

"Entwicklung von Gasjet-Transportsystemen für Spalt-
produkte und ihre Kopplung mit Verfahren zur konti-
nuierlichen Trennung kurzlebiger Spaltprodukt-nuklide"

D i s s e r t a t i o n
zur Erlangung des Grades
"D o k t o r
d e r N a t u r w i s s e n s c h a f t"

am Fachbereich Chemie
der Johannes Gutenberg-Universität
in Mainz

Elmar Stender
geb. in Mainz

Mainz, 1979



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41552619_0078

"Entwicklung von Gasjet-Transportsystemen für Spalt-
produkte und ihre Kopplung mit Verfahren zur konti-
nuierlichen Trennung kurzlebiger Spaltprodukt nuklide"

D i s s e r t a t i o n
zur Erlangung des Grades
"D o k t o r
d e r N a t u r w i s s e n s c h a f t"

am Fachbereich Chemie
der Johannes Gutenberg-Universität
in Mainz

Elmar Stender
geb. in Mainz



Dekan

1. Berichterstatter

2. Berichterstatter

Tag der mündlichen Prüfung

Prof. Dr. W. Liptay

Prof. Dr. G. Herrmann

Prof. Dr. H.O. Denschlag

5. Juli 1979

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit werden die Entwicklung von Gasjet-Transportsystemen für Spaltprodukte sowie deren Kopplung an kontinuierliche Trennverfahren aus wässrigen Lösungen (SISAK) und an einen Massenseparator zur on-line Trennung neutronenreicher Nuklide beschrieben.

Mit Gasjet-Systemen können Nuklide aus der Spaltung von ^{235}U oder anderen Spaltstoffen mit thermischen Neutronen über größere Entfernungen (100 m und mehr) transportiert werden. Als Träger für die Nuklide dienen Aerosole (Cluster), die entweder organischer (z.B. Äthylen) oder anorganischer Natur (z.B. Kaliumchlorid) sind. Die Cluster werden mit einem Transportgas (Stickstoff, Helium u.a.) unter laminaren Strömungsbedingungen durch 1 mm-Kapillaren geführt. Der Durchmesser der Cluster schwankt zwischen 10^{-7} und 10^{-6} m. Die Zeit von der Erzeugung eines Nuklids bis zur Detektion am Ende einer 8 m langen Kapillare beträgt für die benutzten Äthylen/Stickstoff- und Kaliumchlorid/Helium-Gasjetsysteme 0,8 s.

Durch die Kopplung verschiedener Gasjet-Systeme an die mit H-Zentrifugen arbeitende kontinuierliche Extraktionstechnik SISAK konnten die Elemente Lanthan, Cer, Praseodym, Zirkonium, Niob und Technetium aus den komplexen Spaltproduktgemischen abgetrennt werden. Die on-line Technetiumchemie wurde für $\gamma\gamma(t)$ -Messungen an den neutronenreichen ^{106}Tc (36 s), ^{107}Tc (21 s) und ^{108}Tc (5 s) herangezogen. Die Kopplung eines Kaliumchlorid/Helium-Gasjets an einen mit einer Plasmaionenquelle ausgerüsteten Massenseparator wird beschrieben. Zur Optimierung des Systems wurde die Abhängigkeit der Transmissionsrate von verschiedenen Versuchparametern untersucht.

Inhaltsübersicht

1.	Einleitung	1
2.	Gasjet-Transportsysteme	4
2.2.	Bestrahlungsanordnung, Abbremskammer und Targets	9
2.3.	Aerosole und ihre Erzeugung	15
2.4.	Eigenschaften der Gasjet-Transportsysteme	20
2.4.1.	Transportausbeute verschiedener Gasjet-Systeme	20
2.4.2.	Transportzeiten	26
2.4.3.	Größe und Konzentration der Aerosole	29
2.4.4.	Massenspektrum von Äthylenclustern	32
2.5.	Zusammenfassung	35
3.	Kontinuierliche Abtrennung von Spaltprodukten mit dem Gasjet-SISAK-System	36
3.1.	Die H-Zentrifugen	37
3.2.	Ablauf einer Elementabtrennung (Ce-Chemie)	40
3.3.	Weitere Trennverfahren (La, Pr, Zr/Nb)	43
3.4.	Kontinuierliche Technetium-Abtrennung mit Tetraphenylarsoniumchlorid	47
3.4.1.	Kontinuierliche Technetium-Abtrennung mit dem Alamin 336/HDEHP-System	50
3.4.2.	Spektrum der Technetium-Fraktion	54
3.4.3.	Identifizierte Nuklide der Technetium-Fraktion	64
3.5.	Zusammenfassung	65
4.	Gasjet-Massenseparator-Kopplung	66
4.1.	Begründung und Zielsetzung der Kopplung	66
4.2.	Ankopplung eines Gasjets an eine Plasmaionenquelle	67
4.3.	Aufbau des Massenseparators am Mainzer Reaktor	70
4.4.	Justierung und Optimierung der Anlage	72
4.4.1.	Ionoptische Abbildung und Veränderung der beeinflussenden Parameter	74
4.4.2.	Einfluß der Ionenquellen-Betriebswerte und der Extraktionsbedingungen auf Strahlführung und -profil	76
4.5.	Massenspektrum der Kopplung Kaliumchlorid/Helium-Gasjet mit der Plasmaionenquelle	85

4.6.	Transmissionsmessungen für das Separatorsystem	87
4.6.1.	Heliumstrom	87
4.6.2.	Spaltprodukte	87
4.7.	Zusammenfassung	89
5.	Anhang	90
6.	Literaturnachweis	93

1. Einleitung

Das Vorhaben, immer kurzlebigere Nuklide aus der Spaltung oder Kernreaktionen studieren und damit weiter in bisher unzugängliche Bereiche vordringen zu wollen, erfordert die Anwendung schneller Transportmethoden, damit die Untersuchungen weit entfernt vom Ort der Entstehung der Nuklide möglichst bald nach ihrer Erzeugung begonnen werden können. Die zu untersuchenden Nuklide sind bei der Kernspaltung immer, bei Kernreaktionen oft Bestandteile eines komplexen Gemisches. Störende Nuklide müssen deshalb abgetrennt werden, was entweder mit chemischen oder physikalischen Methoden erfolgen kann.

Die bisher entwickelten off-line Methoden der schnellen Chemie /1/ besitzen den Nachteil, daß die Versuche sehr oft wiederholt werden müssen und die Experimentierzeit durch die Versuchsvorbereitung jedes Einzelversuchs und dem nach jedem Versuch folgenden Reinigungsaufwand nur begrenzt genutzt wird. Zudem müssen beim Einsatz kostbarer Targetmaterialien spezielle Techniken entwickelt werden, die dem Erhalt des Targetmaterials dienen.

Diese Nachteile können durch eine kontinuierliche Arbeitsweise umgangen werden. Die ununterbrochene Bereitstellung der interessierenden Nuklide, die in einem fest positionierten Target erzeugt werden, erfordert den Einsatz strömender Systeme wie es zum Beispiel ein Gasjet-Transportsystem darstellt. Diese Technik hat ihren Ursprung in Beobachtungen an Beschleunigern in den 60er Jahren, wo der Transport radioaktiver Spezies durch Kapillaren über die Distanz einiger Meter verfolgt werden konnte /2/. Der Transport der Reaktionsprodukte ist an die Existenz sogenannter Cluster gebunden. Die Cluster werden vom intensiven Ionenstrahl des Beschleunigers durch Wechselwirkung mit Verunreinigungen im Transportgas erzeugt. Nachdem der Transportmechanismus erkannt war, hat es nicht an Versuchen gefehlt, die Cluster gezielt durch Additive zum Transportgas zu erzeugen, denn die thermischen Neutronen eines Reaktors erwiesen sich zur Clustererzeugung als ungeeignet.

Die entwickelten Gasjet-Transportsysteme können an unterschiedliche on-line Trennsysteme angeschlossen werden. Eines der chemischen on-line Trennverfahren beruht auf der kontinuierlichen Lösungsmittel-

extraktion mit Hilfe schnell rotierender Zentrifugen (SISAK-System). Bei der Kopplung eines Gasjet-Transportsystems an das SISAK-System kommt es darauf an, die Reaktionsprodukte von den Clustern zu lösen, damit das Extraktionsverfahren für das gewünschte Element unbeeinträchtigt abläuft und nicht für das Clustermaterial. Die Abtrennung des Transportgases bereitet hier nur geringe Schwierigkeiten. Gegenüber den chemischen off-line Verfahren /3/ besitzt die on-line Chemie mit dem SISAK-System zwar keinen wesentlichen Zeitvorteil bezüglich des "Trennzeitpunktes", doch werden damit spektroskopische Vielparameter-Untersuchungen an einer Quelle mit konstanter Zerfallsrate ermöglicht. Die Methode eignet sich besonders gut für Untersuchungen von Nukliden mit Halbwertszeiten unter einer Minute bis zu Sekunden. Eine ideale Ergänzung zu den chemischen on-line Verfahren, welche selektiv bezüglich der Ordnungszahl arbeiten, ist der Massenseparator. Die Hauptschwierigkeit bei der Kopplung eines Massenseparators an ein Gasjet-Transportsystem ist der Einsatz einer geeigneten Ionenquelle und die Abschälung des Transportgases von den Clustern. Der Massenseparator ermöglicht Untersuchungen von Nukliden, die bei chemisch isolierten Proben durch benachbarte Isotope gestört werden können. Bei der Auftrennung des komplexen Spaltprodukt-Gemisches hat man die Möglichkeit, durch die Art der Ionisation in der Ionenquelle von vorneherein schon Elemente auszuschließen, oder die oft sehr unterschiedlichen Halbwertszeiten der Nuklide einer Zerfallsreihe auszunutzen, indem man die massengetrennte Aktivität auf Transportbändern außerhalb des Ionenstrahls zur Messung bringt. So können zum Beispiel die Alkalielemente durch eine bestimmte Target-Ionenquelle-Kombination von den übrigen Isobaren abgetrennt werden /4/. Diese Möglichkeit in Verbindung mit einem Laser wurde herangezogen, um an massengetrennten Alkali-Nukliden aus der Kernspaltung Kernmomente und Ladungsradien zu messen und optische Spektroskopie zu betreiben /5/. Im folgenden wird die Entwicklung von Gasjet-Transportsystemen für Spaltprodukte und ihre Optimierung bezüglich der Transportausbeute beschrieben. Es schließt sich anwendungsorientiert die Kopplung unterschiedlicher Gasjet-Transportsysteme an chemische on-line Verfahren an, wobei mit einer Technetium-on-line-Abtrennung aus einem komplexen Plutonium-Spaltproduktgemisch umfangreiche

γ -spektroskopische Daten gewonnen werden konnten. Die Verbindung eines Kaliumchlorid/Helium-Gasjets mit einem Massenseparator ermöglichte nach Optimierung der Anordnung den Nachweis massengetrennter Nuklide mit Halbwertszeiten im Sekundenbereich bei Transmissionsraten von ungefähr 1 % und zeigte, daß die Schnelligkeit der Trennung nur noch von der Transportzeit der Nuklide im Gasjet bestimmt wird.

2. Gasjet-Transportsysteme

Die Schnelligkeit von Gasjet-Transportsystemen wird bestimmt vom Volumen der Abbremskammer, in der die Spaltbruchstücke aus dem Target entlang ihres Weges im Gas thermalisiert werden, und von Durchmesser und Länge der Kapillare. Eine Volumenverminderung der Abbremskammer macht eine Erhöhung der Dichte (= des Druckes) des Gases im Abbremsraum notwendig, wenn alle Spaltbruchstücke thermalisiert werden sollen. Voraussetzung für einen schnellen Transport ist eine laminare Strömung, die dadurch gekennzeichnet ist, daß die Reynoldszahl Re unterhalb des kritischen Wertes bleibt ($Re \leq 2100$). Der Gasdurchsatz durch eine Kapillare ist direkt proportional dem Druckabfall längs der Kapillare und der vierten Potenz des Radius, sowie umgekehrt proportional der Länge der Kapillare und der Viskosität des Gases (Hagen-Poiseuille'sches Gesetz). Die Erfordernis der Thermalisierung (Bremsweg) und der laminaren Strömung, welche im Zusammenhang mit den Kapillardimensionen steht, sind so gegeneinander abzuwägen, daß die Transportzeit des Gases minimal wird. Je kleiner das Kammervolumen, desto höher ist der erforderliche Gasdruck und um so näher kommt man an den kritischen Bereich der Reynoldszahl; je länger die Kapillare ist, desto höher wird wegen des zunehmenden Reibungswiderstandes bei konstantem Druckgefälle die Transportzeit. Es ist möglich, mit den entsprechenden Beziehungen die Dimensionen der Bremskammer und die Abhängigkeit der Transportzeit vom Kammerdruck und vom Kapillardurchmesser zu berechnen.

2.1. Physikalische Grundlagen

Bei der Spaltung von ^{235}U mit thermischen Neutronen beträgt die mittlere totale kinetische Energie 171 MeV /6/. Die mittlere kinetische Energie des leichten Bruchstücks wurde mit 102 MeV und des schweren Bruchstücks zur Sicherheit mit der oberen Grenze von 80 MeV angenommen /7/. Die Dimension der Bremskammer richtet sich somit nach der Energie des leichten Bruchstücks, wenn man alle in das Kammervolumen austretenden leichten Bruchstücke erhalten will. Die Abhängigkeit der Reichweite vom Druck und vom Bremsgas wurde für

das leichte Spaltprodukt ^{95}Y (102 MeV) und das schwere Bruchstück ^{141}Ba (80 MeV) für Helium und Stickstoff als Bremsgas zwischen 1 und 5 bar Druck berechnet /8/ und ist in Abbildung 1 graphisch dargestellt. Die Absorption der Spaltbruchstücke im Uran wurde vernachlässigt.

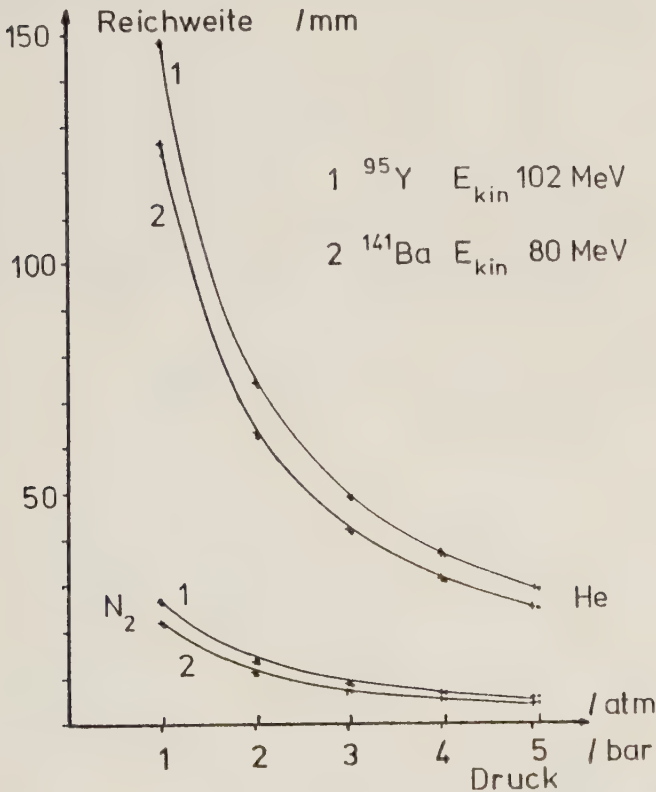


Abb. 1: Reichweite repräsentativer Spaltprodukte in Abhängigkeit vom Druck

Man erkennt aus Abb. 1, daß die Reichweitenunterschiede zwischen leichtem und schwerem Bruchstück nur ca. 15 % ausmachen und die Reichweiten mit Zunahme der Masse der Stoßpartner (He = 4, N = 14) abnehmen. Die Reichweitenabnahme mit steigendem Druck wird mit hö-

herer Masse des Stoßpartners geringer, wie an dem flacheren Kurvenverlauf zu erkennen ist. Der störungsfreie Transport der Cluster mit dem Transportgas in der Kapillare setzt die laminare Strömung voraus, die bei Reynoldszahlen $Re \leq 2100$ vorhanden ist /9/. Die Reynoldszahl gibt bei Strömungen in Rohren das Verhältnis von Trägheitseinflüssen zu Reibungseinflüssen wider. Sie ist für kreisrunde Rohre definiert /9/

$$Re = \frac{\rho \cdot d \cdot u}{\eta} \quad \frac{(g \cdot cm^{-3}) \cdot cm \cdot (cm \cdot s^{-1})}{(g \cdot cm^{-1} \cdot s^{-1})}$$

Es bedeuten ρ die Dichte, d den Rohrdurchmesser, u die mittlere Strömungsgeschwindigkeit des Gases und η die Viskosität. Die mittlere Strömungsgeschwindigkeit berechnet sich aus dem Gasdurchsatz (Hagen-Poiseuille'sches Gesetz) durch den Rohrquerschnitt.

$$V = \frac{\Delta p}{8 \cdot \eta \cdot l} \cdot \pi r^4 \quad \frac{(g \cdot cm \cdot s^{-2} / cm^2) \cdot cm^4}{(g \cdot cm^{-1} \cdot s^{-1}) \cdot cm}$$

$$u = V \cdot q^{-1} \quad (cm^3 \cdot s^{-1}) \cdot cm^{-2}$$

Es bedeuten V den Gasdurchsatz, Δp den Druckunterschied zwischen den Enden der Kapillare, r den Kapillarradius, η die Viskosität, l die Kapillarlänge und q die Querschnittsfläche der Kapillare.

Für die Berechnungen des Gasdurchsatzes wurden die Kapillardurchmesser 0,05-0,1-0,2 cm, die Gase Stickstoff und Helium, Druckdifferenzen von 1 bis 4 (10) bar und eine Kapillarlänge von 7 m angenommen (Tab. 2; Abb. 2) Die Werte für Dichte und Viskosität der eingesetzten Gase sind in Tab. 1 aufgeführt.

Der Tabelle 2 kann man entnehmen, daß Helium für 7 m lange Kapillaren bis zu einer Druckdifferenz von 10 bar für Kapillardurchmesser ≤ 1 mm geeignet ist; strebt man kurze Transportzeiten an, werden wegen des daraus geforderten geringen Kammervolumens hohe Heliumdrücke zur Thermalisierung des Spaltbruchstückes benötigt (Abb. 1). Die Folgen sind hohe Druckbelastung der Kapillaren und Schwierigkeiten bei der Bewältigung hoher Gasdurchsätze (5 bis $10 \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$) in den

angekoppelten Trennverfahren. Mit Stickstoff als Bremsgas wird nur ein Teil der Schwierigkeiten beseitigt, denn die kritische Reynoldszahl wird hier schon bei geringerem Druckgefälle längs der Kapillaren von 1 mm Innendurchmesser erreicht, und bei Ausweichen auf kleinere Kapillaren vermindert sich schnell die Transportzeit. Alternativ könnten Gasgemische eingesetzt werden, z.B. Helium/Stickstoff, Helium/Argon oder Helium/Krypton.

		Stickstoff	Helium
Dichte	$/\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	$1,251\cdot 10^{-3}$	$1,785\cdot 10^{-4}$
Viskosität	$/\text{g}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$	$1,748\cdot 10^{-4}$	$1,941\cdot 10^{-4}$

Tab. 1: Dichte und Viskosität der Transportgase /10/

p /bar	r /cm	Stickstoff			Helium		
		V $/(\text{cm}^3\text{s}^{-1})$	$\bar{u}$ $/(\text{cms}^{-1})$	Re	V $/(\text{cm}^3\text{s}^{-1})$	$\bar{u}$ $/(\text{cms}^{-1})$	Re
1	0,025	1,3	637	228	1,1	576	27
	0,05	20,1	2559	1832	18	2293	211
	0,1	321	10216	14622	289	9200	1692
2	0,025	2,5	1273	456	2,3	1151	53
	0,05	40,1	5118	3663	36,1	4586	422
3	0,025	3,8	1935	693	3,4	1727	79
	0,05				54,2	6879	633
4	0,025	5,0	2547	911	4,5	2302	106
	0,05				72,3	9172	844
10	0,025	12,5	6366	2278	11,3	5755	265
	0,05				181	22931	2109

Tab. 2: Reynoldszahlen in Abhängigkeit vom Gasdurchsatz 7 m langer Kapillaren

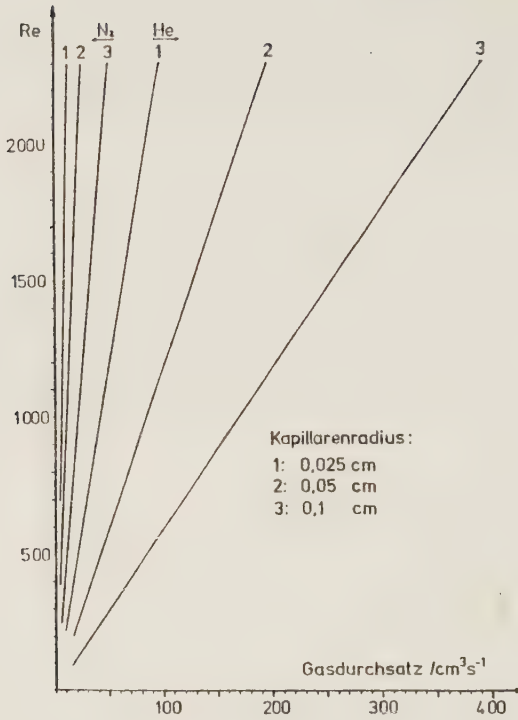


Abb. 2: Reynoldszahlen in Abhängigkeit vom Gasdurchsatz bei 7 m langen Kapillaren

2.2. Bestrahlungsanordnung, Abbremskammer und Targets

Die Bestrahlungsanordnung für das Gasjet-Transportsystem am Mainzer TRIGA MARK II-Reaktor ist in Abb. 3 dargestellt.

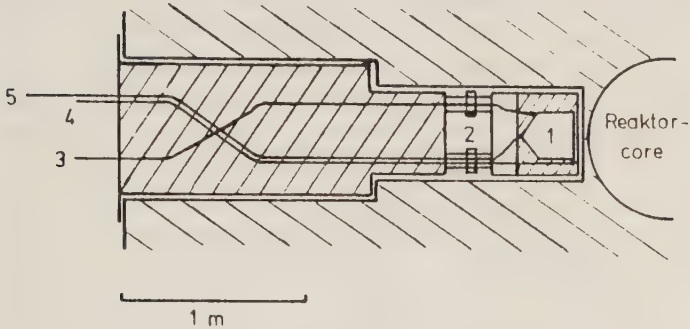


Abb. 3: Bestrahlungsanordnung des Gasjet-Transportsystems am Reaktor

Die Abbremskammer (1) aus Reinaluminium mit dem Target ist in einem der radialen Strahlrohre nahe dem Reaktorcore an das Rohrpostsystem des Strahlrohreinsetzes angekoppelt (2). Die Versorgungsleitung für die Zuführung des Transportgases mit den Clustern (3) besteht aus Polypropylen (5 mm Innendurchmesser) und die Verbindungsleitung für die externe Messung des Kammerdruckes (4) aus einem Polypropylen Schlauch von 2,5 mm Innendurchmesser. Diese beiden Leitungen und die Transportkapillare (5) werden in den Rohrpostrohren nach außen geführt. Das System ist also gegenüber dem Strahlrohr durch die Rohrpostrohre voll geschlossen. Eventuelle Lecks (z.B. durch Materialermüdung der mit der Kammer durch Epoxidkleber verbundenen Schlauchanschlüsse) würden Aktivität in die Reaktorhalle treten lassen, was sehr schnell und empfindlich durch die Luftüberwachung angezeigt würde.

Die Kammer, in der die Spaltbruchstücke thermalisiert werden, ist bestimmt durch die oben durchgeführten Berechnungen zur Reichweite und laminaren Strömung. Sie ist in Abb. 4 gezeigt. Die Abbremskam-

mer ist zylindrisch mit konischem Abschluß, um weitgehend Turbulenzen des durch die 5 mm-Bohrung in der Kammerwand über eine Lochplatte zugeführten Transportgases (hier Stickstoff) zu vermeiden. Das Transportgas wird parallel zur Kammerwand strömen, um dann im konischen Teil der Kammer (Öffnungswinkel 90°) zur Kapillare geleitet zu werden. Zum Anschluß eines Manometers zur Messung des Kammerdruckes dient ein 2,5 mm-Abgang vom Abbremsraum.

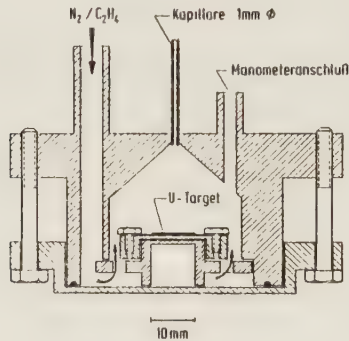


Abb. 4: Abbremskammer für das Gasjet-Transportsystem am Reaktor (Volumen ca. 10 cm^3)

Die 1 mm-Kapillare aus Polyäthylen steht ca. 1 mm in den Abbremsraum hinein und ist senkrecht zur Rohrwand glatt abgeschnitten, um Einlaufstörungen des Gases so gering wie möglich zu halten /9b/. Der Radius des zylinderförmigen Teils der Kammer wurde festgelegt unter der Bedingung minimalen Kammervolumens und der Forderung, daß möglichst wenig Spaltprodukte während des Abbremsvorgangs die Kammerwand erreichen. In Stickstoff bei 2 bar Druck wird ein leichtes Spaltprodukt wie das ^{95}Y (102 MeV) längs eines Weges von 13,3 mm auf thermische Energie abgebremst /8/ (s. Abb. 1). Der Radius des zylindrischen Kammerteils wurde deshalb auf 17 mm festgelegt, weil die Targets nicht punktförmig (s.u.), sondern kreisrund mit 5 mm Radius hergestellt wurden. Die Höhe der Kammer richtet sich nach der

Position des Targets, welches, auf einen Targethalter fixiert, auf die Lochplatte aufgeschraubt wurde. Zur Volumenverminderung schließt sich an den 12 mm hohen Zylinder keine Halbkugel, sondern ein Kegel mit 90° Kegelwinkel an. Das Volumen oberhalb der Lochplatte beträgt (unter Abzug der Targethalterung) ca. 10 cm^3 .

Wird die Thermalisierung bei 2 bar Kammerdruck mit Stickstoff durchgeführt und das Transportgas durch eine 7 m lange Kapillare von 1 mm Innendurchmesser geleitet, ergibt sich eine Reynoldszahl von $Re = 1725$ und ein Gasdurchsatz von ca. $20 \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$; dies stimmt mit den Berechnungen gut überein (Tab. 2). Die Kammer wird theoretisch in 0,5 s einmal ausgespült. Die mittlere Laufzeit eines Gasteilchens zwischen den Enden der Kapillare beträgt ca. 0,3 s. Die mit den Clustern transportierte Aktivität braucht also im Mittel weniger als 1 s bis zum Austritt aus der Kapillare. Ein solches Gasjet-Transportsystem erlaubt also Untersuchungen von Nukliden mit Halbwertszeiten bis in den Bereich von wenigen Sekunden herunter.

Da der am Ende des Strahlrohres zu Verfügung stehende Raum beschränkt ist und kurze Ausspülzeiten angestrebt werden, kann Helium als Bremsgas nur bei Anwendung hoher Drücke verwendet werden (Abb. 1), wenn man alle Spaltprodukte im Abbremskammervolumen thermalisieren will. Diese hohen Drücke bedingen einen hohen Gasdurchsatz (Tab. 2; Abb. 2), was zu Schwierigkeiten mit den anschließenden Trennverfahren führen kann. Aus diesem Grund muß ein Teil der kinetischen Energie der Spaltbruchstücke in einem festen Absorber absorbiert werden. Günstig ist die Bedeckung des Targets mit Aluminiumfolie.

Wie man der graphischen Darstellung des berechneten Energieverlustes /8/ und der Reichweite der Spaltbruchstücke ^{95}Y und ^{141}Ba entnehmen kann (Abb. 5a, b), hat das leichte Bruchstück bei einer Targetbedeckung mit Aluminium von $1,83 \text{ mg cm}^{-2}$ noch $102 - 60 = 42 \text{ MeV}$ kinetische Energie, während das schwere Bruchstück ^{141}Ba noch 19 MeV besitzt. Die Abbremskammer müßte also bei einer Targetbedeckung mit einer $6,25 \text{ }\mu\text{m}$ starken Aluminiumfolie für eine Reichweite von 33 mm bei 3 bar Helium-Kammerdruck gebaut werden.

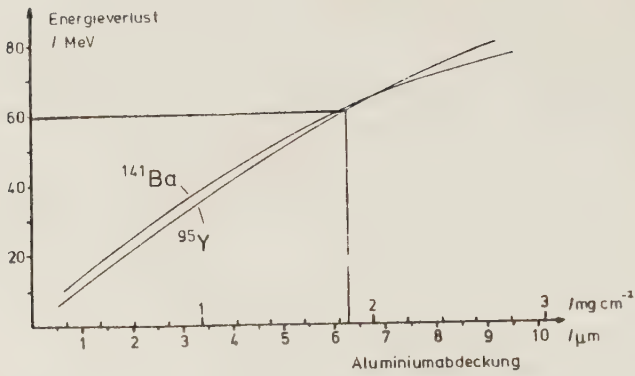


Abb. 5a: Energieverlust als Funktion der Bedeckung des Targets

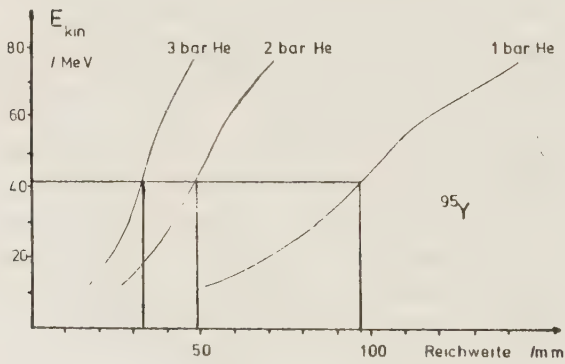


Abb. 5b: Reichweite des ^{95}Y in Abhängigkeit von Energieverlust und Gasdruck

Es ist möglich alle schweren Spaltfragmente mit einer Abdeckfolie zu absorbieren. Zugleich sinkt die Ausbeute an leichten Spaltprodukten. Der Vorteil eines mit Helium betriebenen Gasjet-Transportsystems liegt neben der Erzielung niedriger Transportzeiten darin, daß man das Transportgas von den in der Mitte der laminaren Strömung geführten Cluster (Kernstrahl) leichter mit der Skimmertechnik abtrennen kann als bei Stickstoff; dies ist leicht einsichtig, da bei konstanter Teilchengeschwindigkeit die kinetische Energie nur noch von der Masse der Teilchen abhängt und das Massenverhältnis Stickstoff/Helium 7 beträgt. Die Expansion des Gasjet-Strahls in den Vakuumraum ist also wegen der geringeren kinetischen Energie des Heliums besser als für Stickstoff, weil Heliumatome schneller von der Austrittsrichtung des Gases in den Vakuumraum abweichen als die Stickstoffmoleküle. Die Targets wurden entweder durch Elektrolyse oder Molekularplating /11/ hergestellt. Als Target wurde hauptsächlich eine kreisrunde Aluminiumfolie verwendet, auf die durch Molekularplating ^{235}U oder ^{239}Pu auf eine 10 mm Durchmesser große Fläche aufgebracht wurde. Die Plutonium-Targets mit einer Massebelegung unter $0,3 \text{ mgcm}^{-2}$ und die Uran-Targets wurden aus Isopropanol hergestellt; dabei wurde die einzusetzende Menge Spaltmaterial aus einer schwach salpetersauren Lösung bis fast zur Trockne eingedampft, in ca. 5 ml Isopropanol aufgenommen und das Plutonium oder Uran kathodisch bei 1,5 mA Strom und 800 - 900 V Potentialdifferenz gegen eine Platindraht-Anode auf der Aluminiumfolie abgeschieden.

Da größere Mengen Plutonium (1 mg) sich in 5 ml Isopropanol nicht vollständig lösten, wurde beim Molekularplating so dicker Targets Dimethylsulfoxid (DMSO) eingesetzt, obwohl in diesem Lösungsmittel das Molekularplating unter Umständen zu weniger guten Abscheideergebnissen führt. Die so hergestellten Targets wurden bei 120°C getrocknet und mit einer Aluminium-Schutzschicht von weniger als $0,1 \text{ mgcm}^{-2}$ (Schichtdicke ca. $0,4 \mu\text{m}$) bedampft.

Zu Testzwecken wurden Targets mit $0,1 \text{ mg } ^{235}\text{U}$ bzw. ^{239}Pu ($0,127 \text{ mgcm}^{-2}$) verwendet. Für Versuche, bei denen höhere Spaltproduktaktivität erforderlich war, betrug die Spaltmaterialmenge 0,5 und 1 mg Uran oder Plutonium ($0,64$ bzw. $1,27 \text{ mgcm}^{-2}$).

Ein zweiter Targettyp, der in Abb. 6 gezeigt wird, besteht aus einem Stahlzylinder mit ringförmiger Einfräsung, in der das Spaltmaterial

aufgebracht ist. Die Spaltprodukte treten hierbei senkrecht zur Kammerwand aus. Die Fixierung in der Abbremskammer geschieht mit einer speziellen Lochplatte. Diese Targethalter-Kombination wurde entwickelt für die Überprüfung der Abhängigkeit der Ausbeute des Gasjets von der Austrittsrichtung der Spaltprodukte. Für den Austritt senkrecht zur Gasflußrichtung in der Abbremskammer wurden keine signifikanten Unterschiede festgestellt.

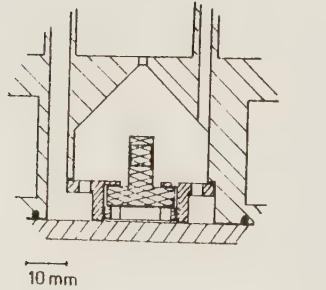


Abb. 6: Targetkammer mit "Stempeltarget"

2.3. Aerosole und ihre Erzeugung

Aerosole sind charakterisiert als nebelartige Verteilung fester oder flüssiger Substanzen in einem Gas. Die im Gas schwebenden Teilchen müssen über längere Zeit (Minuten) erhalten bleiben, d.h. nicht so groß werden, daß sie durch die Schwerkraft rasch sedimentieren oder wegen zu kleiner Größe schnell verdampfen. Sehr kleine Teilchen im Größenbereich von Molekülen (<1 nm) vermischen sich mit dem Gas und können nicht mehr vom Gasverhalten unterschieden werden. Die sehr großen Teilchen (≥ 10 μm) bilden mit dem Gas ein grobgemischtes Gemenge und sinken deshalb zu Boden, weil die Schwerkraft gegen die Reibungskraft und die Brown'sche Molekularbewegung überwiegt. Die Sinkgeschwindigkeit solch großer Teilchen in Luft beträgt zwischen $0,5$ und 5 cm s^{-1} . Zu den Aerosolen werden alle flüssigen oder festen physikalisch-chemischen Aggregationen von 1 nm bis 10 μm Durchmesser gezählt, die im Gas in Schwebezustand sind. Teilchen von $0,5$ μm im Durchmesser werden allein durch die Brown'sche Molekularbewegung am Sedimentieren gehindert /9b/.

Bei der Erzeugung von Aerosolen kommt es nicht nur auf das Erreichen der für den vorgesehenen Zweck erforderlichen Teilchengröße und -dispersion an, sondern auch auf eine mit einfachen Mitteln zu erreichende gleichmäßige und genügende Produktionsrate. Zwei Methoden kommen besonders in Frage: die Kondensation von Gasen und die Verdampfung von Feststoffen im Gasstrom.

Kondensation von Gasen

Bei Übergang von der flüssigen Phase komprimierter Gase in die Gasphase wird wegen der für die Verdampfung verbrauchten Wärmeenergie Kondensation beobachtet. Für die Gase Äthan und Äthylen wurde das Kondensationsverhalten nahe der kritischen Temperatur T_k mit Hilfe der Lichtstreuung näher untersucht /12a, b/. Dabei wurde gefunden, daß bei Äthan zwischen 11° und $9,5^\circ$ C und bei Äthylen zwischen $36,6^\circ$ und $34,2^\circ$ C Tröpfchen von 20 bis 1000 Moleküldurchmessern auftreten, das entspricht 7 bis 370 nm. Für Äthylenmolekül-Cluster wurde die Existenz im Gasjet durch Lichtstreuung nachgewiesen /13/. Es gibt noch eine Reihe anderer kondensierbarer Gase, de-

ren kritische Temperatur zwischen 0 und 45° C liegt (Tab. 3), und die ein ähnliches Verhalten wie die untersuchten Gase Äthan und Äthylen besitzen. Diese Gase wurden nicht untersucht, weil die im folgenden Abschnitt beschriebenen Feststoff-Aerosole sich als vorteilhafter für die Experimente erwiesen.

Gas	T_k /°C	p_k /bar	Gas	T_k /°C	p_k /bar
CO ₂	31	73,9	C ₂ H ₂	35,5	62,4
SiClF ₃	34,5	34,7	C ₂ H ₄	9,9	51,2
Xe	16,6	58,8	C ₂ H ₆	32,2	48,8
CClF ₃	28,85	38,7	CH ₃ F	44,6	58,8

Tab. 3: Kritische Werte der Temperatur T_k und des Druckes p_k einiger anorganischer und organischer Gase /10/

Feststoff-Aerosole

Im Gegensatz zur Bildung von Aerosolen bei der Entspannung kondensierter Gase kann man bei anorganischen Feststoffen die Erzeugung der Aerosole in einem bestimmten Temperaturbereich gut steuern. In Tab. 4 sind einige Stoffkonstanten zur Aerosolerzeugung verwendbarer Feststoffe aufgeführt. Die Auswahl ist willkürlich, denn solche Feststoffe müssen nur der Forderung genügen, sich bei Erhitzung bis zum Siedepunkt nicht zu zersetzen. Geeignet sind beispielsweise die Alkali-Halogenide und andere Halogenide der Elemente der ersten und zweiten Gruppe des Periodensystems.

Die Erzeugungsrate der Aerosole aus Feststoffen ist proportional dem Dampfdruck der eingesetzten Verbindung. Abb. 7 zeigt die Dampfdruckkurve für Kaliumchlorid /14/ mit einer mittleren Steigung von ca. 3,3 $\mu\text{bar}/10^\circ\text{C}$ im Bereich bis 700° C.

Stoff	Schmelz- punkt /°C	Siede- punkt /°C	Molekular- gewicht /(gMol ⁻¹)	Dichte /(gcm ⁻³)	
KF	857	1505	58,10	2,49	
KCl	770	1500*	74,56	1,984	* subl.
KBr	734	1435	119,01	2,75	
NaF	933	1695	41,99	2,558	
NaCl	800	1413	58,44	2,165	
NaBr	747	1390	102,90	3,202	
AgCl	455	1550	143,32	5,56	
BaCl ₂	963	1560	208,25	3,917	

Tab. 4: Stoffkonstanten von Halogeniden /10/

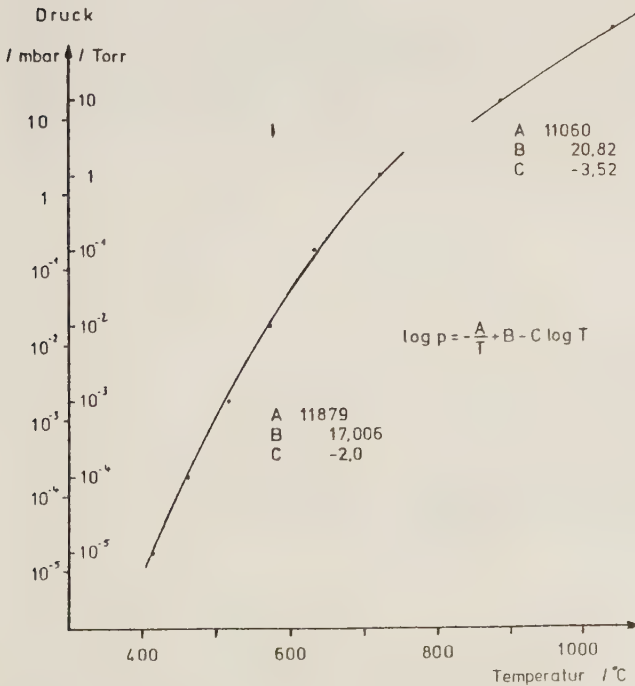


Abb. 7: Dampfdruckkurve für Kaliumchlorid

Bevor derartige Verbindungen eingesetzt werden, muß geprüft werden, ob die durch Neutronenaktivierung induzierten Nuklide stören. Bei diesen Berechnungen /15/ wurde zugrunde gelegt, daß ein Mikrogramm der jeweiligen Alkali-Elemente und Halogene eine Sekunde lang einem Fluß thermischer Neutronen von $10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ausgesetzt ist. Es ergeben sich für die Aktivierungsprodukte des Kaliums, Natriums, Fluors und Broms spezifische Aktivitäten kleiner $1 \text{ s}^{-1} \mu\text{g}^{-1}$. Somit sind keine Schwierigkeiten beim Betrieb des Gasjets am Reaktor und der anschließenden Messungen zu erwarten.

Aerosolerzeugung

Die Erzeugung der Aerosole ist schematisch in Abb. 8 gezeigt. Für Aerosole aus den geeigneten Gasen wird das Gas einer Druckgasflasche entnommen (1a), mit einem Feinregulierungsventil dosiert und über einen Mengenmesser (3a) in die Kammer (4a) geleitet, wo es mit einem Inertgas (2a) wie Helium oder Stickstoff gemischt werden kann. Das reine Gas mit den Aerosolteilchen oder das Gasgemisch wird dann aus der Kammer in die Versorgungsleitung (5a) zur Abbremskammer geleitet. Die Aerosolteilchen entstehen in der Druckgasflasche (1a) oberhalb des kritischen Drucks p_k und im Ventil durch Kondensation (s. Tab. 3).

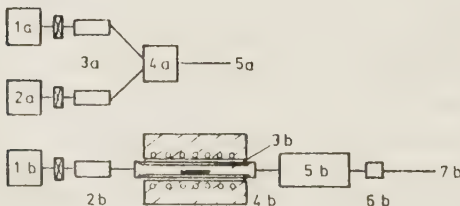


Abb. 8: Schematische Darstellung zur Aerosolerzeugung (s. Text)
 a) Gase b) Feststoffe

Bei der Erzeugung von Aerosolen aus Feststoffen wird das inerte Transportgas (1b) nach Messung des Gasdurchsatzes (2b) über ein mit Feststoff gefülltes Keramikschiffchen geleitet (3b), das sich in einem thermostatgesteuerten Rohrofen (4b) befindet. Das Schiffchen im Rohrofen wird wegen des Überdrucks des Transportgases in einem Stahlrohr beheizt, in das ein Quarzrohr eingeschoben ist. Das Stahlrohr endet beidseitig mit Flanschen, an die der Transportgas-Schlauch angeschlossen wird. Das in Strömungsrichtung abgehende Ende des Flansches muß bei Verwendung von Helium als Transportgas mit Preßluft gekühlt werden, da sonst der Polypropylenschlauch schmilzt. Der aerosolbeladene Gasstrom passiert nun ein Schlauchfilter (5b), bestehend aus einem 15 m langen Polypropylenschlauch von 5 mm Innendurchmesser und einer Glasfritte (6b). Längs des Schlauches verbinden sich die sehr kleinen Aerosolteilchen zu größeren Aggregaten und werden durch Wandstöße eliminiert. Die anschließende G 1-Fritte (6b) muß häufig gewechselt werden, da die großen Aerosolteilchen die Fritte verstopfen, und die transportierte Aktivität absinkt. Als Erfahrungswert gilt ein Wechsel der Fritte pro Betriebstag des Gasjets. Das Transportgas mit dem Aerosol wird der Abbremskammer zugeleitet (7b).

2.4. Eigenschaften von Gasjet-Transportsystemen

2.4.1. Transportausbeute verschiedener Gasjet-Systeme

Die Transportausbeute der Gasjet-Systeme wurde über die Messung der Spaltproduktaktivität erhalten. Als Ausbeute wird das Verhältnis der am Ausgang der Kapillare aufgefangenen Spaltproduktaktivität zu der 1 mm über dem Target erhaltenen Aktivität definiert. Die Aktivitäten wurden für mehrere Nuklide der leichten und schweren Bruchstücke der Spaltung von ^{235}U mit thermischen Neutronen bestimmt, z.B. ^{93}Sr , ^{94}Y , ^{95}Y , ^{101}Mo , ^{101}Tc , ^{104}Tc , ^{141}Ba , ^{142}Ba , ^{143}La , ^{146}Ce . Es wurde darauf geachtet, daß die Nuklide keine Edelgase (z.B. ^{93}Kr , ^{94}Kr , ^{95}Kr , ^{141}Xe , ^{142}Xe) oder sonstige flüchtige Elemente als Vorläufer (z.B. Jod) haben und daß die Aerosole mit der anhaftenden Aktivität hinter der Kapillare vollständig aufgefangen wurden. Die Vorrichtung für die Zurückhaltung der Aerosole bestand aus zwei mit einer Klammer zusammengepreßten Hohlzylindern mit O-Ringen und einer Aktivkohlefall. Im ersten Hohlzylinder endete die Kapillare, der zweite war verbunden mit der Aktivkohlefall, die an das Absaugsystem der Reaktorhalle angeschlossen war. Zwischen den Hohlzylindern wurden 2 bis 3 Glasfaserfilter (Selecta Nr. 6, Schleicher & Schüll /16/) eingespannt: Faserstärke 0,5 bis 1,5 μm ; Flächengewicht 7 mgcm^{-2} ; Dicke 0,35 mm; spezifische Oberfläche 2 m^2g^{-1} ; Retention $\geq 99,97\%$ für Ölaerosole mit der Hauptmenge an Teilchen zwischen 0,5 und 0,3 μm . Die γ -spektroskopische Auswertung von drei hintereinanderliegenden Glasfaserfiltern ergab, daß die ersten zwei mehr als 97 % der Aktivität enthielten. Nur Edelgase, deren Folgeprodukte sowie Halogene wurden in der nachgeschalteten Aktivkohle-Falle gefunden, was beweist, daß die Cluster mitsamt der anhaftenden Aktivität von den Glasfaserfiltern zurückgehalten wurden.

Für einen Äthylen/Stickstoff-Gasjet (33 Vol.-% Äthylen:67 Vol.-% Stickstoff) bei 2 bar Kammerdruck und einer 7 m langen 1 mm-Polyäthylen-Kapillare wurde die Ausbeute zu 70 % bestimmt; die Reproduzierbarkeit, die über mehrere Tage geprüft wurde, betrug 3 %. Neben Gasjets mit verschiedenen Äthylen/Stickstoff-Mischungen wurden auch Gasjets mit Äthan und Kohlendioxid untersucht /17/. Dabei konnte bestätigt werden, daß die Transportausbeute des Gasjets von den kritischen Größen T_k und p_k abhängt /18/; Aktivitätstransport findet

nur statt, wenn Temperatur und Druck oberhalb der kritischen Werte der Größen liegen.

Die Ausbeute für reines Äthylen und für mit Stickstoff verdünntes Äthylen sinken erst unterhalb eines Mischungsverhältnisses Äthylen: Stickstoff $\leq 0,25$, wie Abb. 9 zeigt. Die Ausbeuten mit reinem Stickstoff lagen unter 1 % und waren nicht mit guter Statistik meßbar.

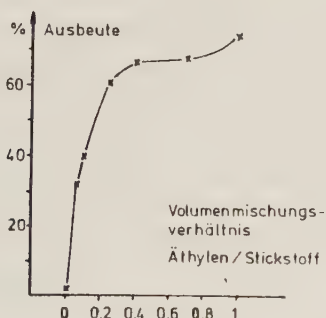


Abb. 9: Transportausbeute des Gasjets in Abhängigkeit vom Volumenmischungsverhältnis Äthylen:Stickstoff

Während sich bei den Versuchen mit Äthylen und Äthylen/Stickstoff-Mischungen herausstellte, daß die Verwendung reinen Äthylens als Aerosolbildner nicht wesentlich günstigere Transportausbeuten ergibt und daß die Ausbeuten bei Raumtemperatur nicht durch die von der Expansion des Gases bedingten Abkühlung der Druckgasflasche und des Reduzierventils beeinflußt werden, zeigten sich bei den Versuchen mit Äthan und Kohlendioxid als aerosolbildende Gase wesentliche Abhängigkeiten von der Druckbehälter- und Ventiltemperatur. Die geringen Transportausbeuten können ihre Ursache in der Lebensdauer der Cluster haben, weil die Konzentration durch Verdampfung auf dem Transportweg absinkt. Die Abnahme der Ausbeute in Abhängigkeit vom Füllungsgrad der Vorratsflasche zeigt Abb. 10 für Kohlendioxid. Eine ähnliche Abhängigkeit wurde für Äthan gefunden. Die Abb. 11 zeigt die Ergebnisse von fünf Versuchreihen zur Ermittlung der günstigsten Bedingungen für den Betrieb eines Kohlendioxid-Gasjet-Transportsystems.

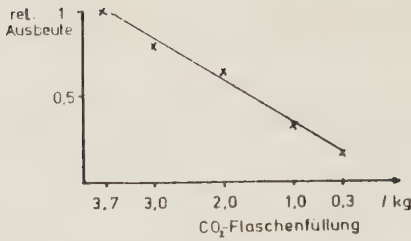
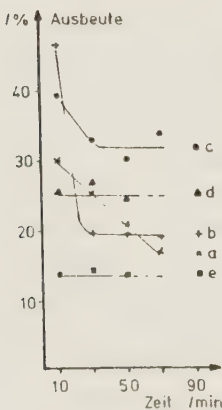


Abb. 10: Abhängigkeit der Transportausbeute eines Kohlendioxid-Gasjets vom Füllungsgrad der Druckgasflasche

- a) Druckgasflasche und Reduzierventil ohne Thermostatisierung, Umgebungstemperatur 20° C; man findet kontinuierlich sinkende Ausbeute
- b) Druckgasflasche bei 38° C thermostatisiert, Reduzierventil bei Umgebungstemperatur 20° C; die Ausbeute liegt im ersten Versuch hoch (46 %), pendelt sich in den folgenden Versuchen auf einen Wert um 19,5 % ein. Die Thermostatisierung der Druckgasflasche auf 38° C ergab die relativ günstigsten Ausbeutewerte im Bereich der geprüften Thermostatisierungen von 32°, 38° und 42° C.
- c) Druckgasflasche bei 38° C, Reduzierventil mit starkem Gebläse auf 20° C gehalten; die Ausbeutewerte lagen um 33 % und konnten auch durch andere Temperaturbedingungen nicht erhöht werden.



- a) ohne Thermostatisierung
- b) Druckgasflasche 38° C
- c) Druckgasflasche 38° C, Reduzierventil 20° C
- d) wie c, Durchmesser der Zuführung von 8 auf 4 mm reduziert
- e) wie c, aber dreifache Kapillarlänge

Abb. 11: Abhängigkeit der Ausbeute von Kohlendioxid-Gasjets von den Aerosolerzeugungs- und -transportbedingungen

Die Meßreihen von a bis c wurden bei einem Gasdurchsatz von ungefähr $20 \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, 2 bar Kammerdruck und einer Länge der Schlauchzuführung zur Kammer von 8 m (8 mm Innendurchmesser) ausgeführt. Für die Meßreihe d wurde gegenüber c nur der Innendurchmesser der Zuleitung auf 4 mm reduziert. Die Meßreihe e unterschied sich von c durch die Verwendung einer dreimal so langen Kapillare (24 m). Die kontinuierlich abnehmende Ausbeute in der Versuchreihe a kann darauf zurückgeführt werden, daß wegen der hohen Verdampfungsenthalpie von 25 kJ Mol^{-1} der flüssigen Phase des Kohlendioxids durch die von der Verdampfung herrührende Abkühlung schnell Cluster entstehen, die für effektiven Transport zu groß sind und wegen des hohen Dampfdruckes des Kohlendioxids bei Raumtemperatur relativ kurzlebig sind. Bei den Versuchen b und c wurde die durch die Verdampfung entzogene Wärme durch Thermostatisierung der Druckgasflasche 7° C oberhalb der kritischen Temperatur T_k kompensiert. Die Ausbeute blieb im Gegensatz zu a konstant und lag durch die Thermostatisierung des Reduzierventils (wo erneute Entspannung des Gases stattfindet) fast um den Faktor 2 höher. Die höheren Ausbeutewerte für b und c sind auf das noch nicht eingestellte Wärmegleichgewicht zurückzuführen.

Die Versuchsreihen d und e werden mit c daraufhin verglichen, daß durch Verdampfung längs des Transportweges kleiner werdende Cluster durch häufige Wandstöße (d und e) eliminiert werden. Da der Kohlendioxid-Gasjet nur maximal die Hälfte der Ausbeute des Äthylen/Stickstoff-Gasjets bringt, erscheint er für die Verwendung als Gasjet-System weniger geeignet.

Bei den Untersuchungen der Aerosolbildner Äthan wurden die gleichen Beobachtungen hinsichtlich der Thermostatisierung gemacht. Die maximale Transportausbeute wurde für die bei 36° C thermostatisierte Druckgasflasche zu 56 % bestimmt. Die Ausbeuten beim Betrieb bei Raumtemperatur pendelten sich nach dem ersten Versuch mit 65 %iger Ausbeute ab dem dritten Versuch auf 38 % ein. Die Abhängigkeit der Ausbeute von der Thermostatisierung war nicht so groß wie beim Kohlendioxid-Gasjet.

Ob die sinkenden Transportausbeuten bei Kohlendioxid und Äthan beim laufenden Betrieb ohne Thermostatisierung auf ein Sinken der Aerosolerzeugungsrate zurückzuführen ist oder auf für den Transport

ungeeignete Teilchengrößen, konnte mit derlei Experimenten nicht getroffen werden. Geeignet wäre für diese Untersuchung eine on-line Beobachtung der Aerosole durch Lichtstreuung.

Die γ -Strahlung der für die Ausbeutemessungen herangezogenen Nuklide wurde mit einem Ge(Li)-Detektor (Wirkungsgrad 6,4 % bez. auf $3 \times 3''$ NaJ bei 1332 keV; Auflösung bei 1332 keV 1,75 keV) gemessen. Die Daten wurden in einem 4 K-Vielkanalanalysator gespeichert, auf Magnetband übertragen und auf einem pdp 11/45-Computer mit Hilfe der Programmbibliothek des Instituts ausgewertet.

Um die mit organischen Clustern transportierten Spaltprodukte durch chemische Reaktionen in z.B. flüchtige Verbindungen zu überführen, sind hohe Reaktionstemperaturen (800° C) notwendig /19/. Diese Technik ist indes auf wenige Elemente beschränkt. Für breitere Anwendungen wurden von den in Tab. 4 aufgeführten Feststoffen Kaliumfluorid, Kaliumchlorid, Kaliumbromid, Natriumchlorid und Natriumbromid auf ihre Transporteigenschaften geprüft.

Das Maximum an transportierter Aktivität (60 bis 70 %) lag um 100 bis 150 K unterhalb ihrer Schmelzpunkte, wobei sich eine nahezu konstante Transportausbeute innerhalb eines ungefähr 50 K breiten Plateaus ergab. Die Tab. 5 zeigt die experimentell gefundenen Temperaturen der Maxima der Transportausbeute für Alkalihalogenide.

Aerosolbildner	KF	KCl	KBr	NaCl	NaBr
Schmelzpunkt /° C	857	770	734	800	747
Temperatur für maximale Ausbeute /° C	700	650	640	675	650

Tab. 5: Rohrofentemperaturen für maximale Transportausbeute für Alkalihalogenide

Bei Kaliumfluorid wurde eine starke Korrosion des Quarzrohreinsatzes des Durchströmungsrohres festgestellt. Typische Ausbeuteverteilungen in Abhängigkeit von der Ofentemperatur sind in Abb. 12 dargestellt.

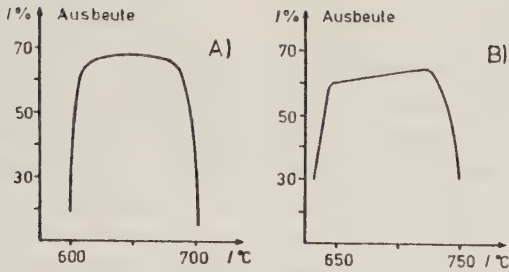


Abb. 12 Transportausbeute als Funktion der Temperatur
 A) KCl (Schmp. 770° C) B) KF (Schmp. 857° C)

Um festzustellen, ob die Oberfläche der Alkalichloridschicht maßgebend für die Ausbeute ist, wurden Ergebnisse für ca. 3 cm² Oberfläche des Kaliumchlorids im Keramikschißchen gegen 30 cm² Oberfläche eines innen mit Kaliumchlorid bedampften Quarzrohres verglichen. Die gleichmäßig opake Bedampfungsschicht im Quarzrohr wurde durch Verdampfen des Kaliumchlorids aus einem längsaufgeschnittenen Tantalrohr erzeugt, welches starr an einem V4A-Stahlrohr befestigt in das Quarzrohr hineinragte. Das Quarzrohr war auf einem Schlitten an den Enden in den Käfigen von Kugellagern drehbar befestigt. Die Drehung des Rohres und die Längsbewegung über das Tantalrohr wurde von Elektromotoren bewirkt. In Höhe des Tantalrohres war konzentrisch außerhalb des Quarzrohres die Doppelwindung des zur induktiven Heizung verwendeten 1 MHz-Generators positioniert. Die Transportausbeuten mit Aerosolen aus dem kaliumchloridgefüllten Keramikschißchen und aus dem mit Kaliumchlorid bedampften Quarzrohr zeigten keine Unterschiede; die zur Verdampfung angebotene Oberfläche hatte offenbar keinen Einfluß auf die Ausbeute. Der hohe experimentelle Aufwand zur Clustererzeugung mit innen bedampften Rohren, der von anderen Arbeitsgruppen durchgeführt wird /57/, ist nicht erforderlich. Die technisch viel einfachere Verwendung eines Schiðchens mit dem Verdampfungsmaterial reicht somit aus.

2.4.2. Transportzeiten

Zur Bestimmung der Transportzeit des Gasjets wurde der Reaktor gepulst und die erzeugte, mit Clustern transportierte Aktivität am Ende einer 8 m langen Polyäthylenkapillare von 1 mm Innendurchmesser, sowie bei der halben Länge (4 m) mit einem β -Zähler gemessen. Der Äthylen/Stickstoff-Gasjet wurde bei 2 bar Kammerdruck mit einem Gasdurchsatz von ca. $20 \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ betrieben. Die in 0,1 s-Schritten gemessene integrale Zählrate wurde in einem 100-Kanal-Analysator gespeichert. Zur Ausschaltung von Totzeiteffekten wurde der β -Detektor in genügendem Abstand in abgeschirmter Position installiert. Ungefähr fünf Minuten vor Impulsstart wurde der Gasjet in Betrieb genommen. Die Neutronenintensitätsverteilung der für die Bestrahlungen verwendeten Impulse erreichte 420 ms nach der Auslösung des Impulses ein Maximum. Der Neutronenimpuls hatte eine Halbwertsbreite von 60 ms. Die freigesetzte Leistung eines jeden Neutronenimpulses betrug ca. 70 MW /20/.

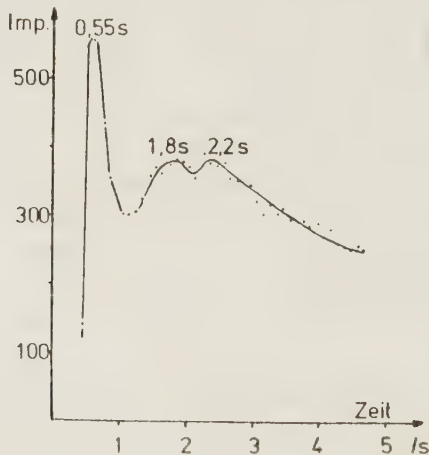


Abb. 13: Summe der β -Zählrate/0,1 s aus 10 Messungen nach Neutronenimpulsbestrahlungen für einen Äthylen/Stickstoff-Gasjet, gemessen am Ende einer 8 m langen 1 mm-Kapillare (2 bar Kammerdruck)

Die Abb. 13 zeigt die mit dem β -Detektor gemessene Aktivitätsverteilung des bei 8 m vorbeiströmenden Gasjets. Das Maximum der Neutronenintensität des Impulses wurde als Zeitpunkt für die Erzeugung der Spaltproduktaktivität festgelegt. In wiederholten Messungen zeigte sich immer ein Maximum der β -Aktivität 0,55 s nach Erzeugung der Spaltproduktaktivität und zwei kleinere Maxima bei 1,8 s und 2,2 s.

Wurde der β -Detektor an der halben Länge der Kapillare installiert, verschoben sich diese Maxima auf 0,35 s bzw. 1,35 s und 1,85 s. Die mit den Clustern transportierte Aktivität strömt also in der Kapillare mit ca. 20 ms^{-1} . Dieser Wert weicht nur wenig vom berechneten Wert für Stickstoff ab (25 ms^{-1} ; Tab. 2).

Die Messungen für einen Kaliumchlorid/Stickstoff-Gasjet bei 2 bar Kammerdruck durch eine 25 m lange 1 mm-Polyäthylenkapillare bei einem Gasdurchsatz von ungefähr $5 \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ ergab einen Aktivitätsanstieg (am Ende der Kapillare gemessen) 2,4 s nach Erzeugung der Nuklide, das Aktivitätsmaximum nach 3,4 s. 50 % der erzeugten Aktivität waren nach 6 bis 8 s transportiert. In der Tab. 6 sind die gemessenen Daten zusammengestellt.

Gasjet	Kapillar- länge /m	Gasdurch- satz /($\text{cm}^3 \text{ s}^{-1}$)	Meßpunkt /m	Aktivitätsmaxima		
				1.	2.	3.
				/s		
$\text{C}_2\text{H}_4/\text{N}_2$	8	20	8	0,55	1,8	2,2
			4	0,35	1,35	1,85
KCl/N_2	25	5	25	3,4	4,2	

Tab. 6: Spaltprodukt-Aktivitätsmaxima im Gasjet nach Neutronenimpuls

Mit der Methode der Multispektren-Messung wurden für Meßzeitenabfolge von 0,6 s und $15 \times 1,0 \text{ s}$ die γ -Spektren des ungehindert am Ende der 8 m langen Kapillare ausströmenden Gasjets mit einem Ge(Li)-Detektor gemessen (Wirkungsgrad 5 % relativ zu $3'' \times 3''$ NaJ bei 1332 keV; Auflösung bei 1332 keV 2,1 keV FWHM) und in einem 16 K-Vielkanal-Analysator gespeichert. In Abb. 14 ist das Transportzeitver-

halten für das gasförmige Spaltnuklid ^{90}Kr (Halbwertszeit 32,5 s; 122,7 keV-Linie ausgewertet) zu sehen. Die Hälfte der ^{90}Kr -Aktivität ist 2,5 s nach Erzeugung am Ende der 8 m langen Kapillare am Detektor vorbeigeströmt. 80 % haben den Meßpunkt nach 4 s passiert. Vergleicht man das Zeitprofil der β -Messung mit der integralen γ -Messung, so ist eine Zuordnung dieser Edelgasaktivität zum letzten Maximum möglich (Tab. 6). Die Auswertung anderer als Edelgas-Aktivitäten aus der Multispektren-Messung war wegen der schlechten Statistik (zu kurze Verweil-/Meßdauer der Nuklide beim ersten Maximum (Abb. 13; Tab. 6) nicht möglich. Ausgeschlossen sind Effekte, die reaktorseitig im Ablauf des Neutronenimpulses liegen, da kein Hinweis bei Durchführung dieser Experimente mit reinem Stickstoff gefunden wurde.

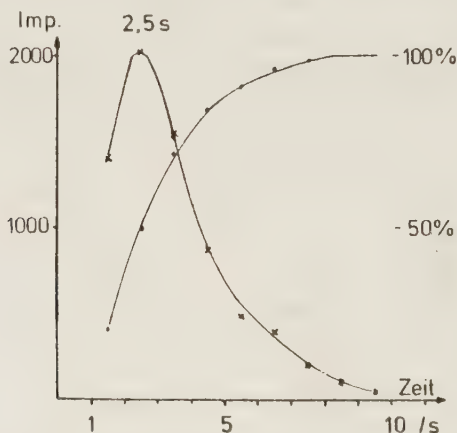


Abb. 14: Zeitliches Transportverhalten des ^{90}Kr im Äthylen/Stickstoff-Gasjet am Ende einer 8 m langen 1 mm Kapillare (2 bar Kammerdruck). Summe der γ -Zählrate aus 10 Messungen

2.4.3. Größe und Konzentration von Aerosolen

Wenn die Transportausbeute eines Gasjets bekannt ist, kann man durch den Einbau von Filtern bekannter Durchlässigkeit in die Transportstrecke die Teilchengröße der Cluster annähernd bestimmen. Diese einfache Methode ergibt jedoch nicht so genaue Werte wie die Lichtstreuung, die für die Bestimmung von Teilchengrößen im Mikrometerbereich herangezogen werden kann.

Ist die "Porengröße" der Filter bekannt, kann man auf die Teilchengröße der durchgewanderten Teilchen schließen; die Abschätzung ist grob, weil die Durchtrittskanäle für die Teilchen nicht geradlinig sind. Die Bestimmungsmethode mit Filtern wurde für einen Äthylen/Stickstoff-Gasjet (1:4) durchgeführt, indem die Filter vor Eintritt des Gasjets in die Abbremskammer eingebaut wurden /17/. In Tab. 7 sind die Ergebnisse zusammengefasst:

Filtertyp	"Porengröße" / μm	Ausbeute /%
Glasfritte D 2	40 - 80	61
Glasfritte D 3	15 - 20	61
Glasfritte D 4	9 - 15	60
Weißband 589/2 *	7	61
Blauband 589/3 *	2	15
Glasfaser Nr.6 *	1	0,1

* Fa. Schleicher & Schüll

Tab. 7: Filter und Ausbeuten

In Übereinstimmung mit Lichtstreuversuchen an Äthylenclustern, die 0,1 bis 1 μm Clusterdurchmesser ergeben haben /13/, konnte so die Größenordnung für die Äthylencluster auf 1 μm Durchmesser abgeschätzt werden. Eine andere Methode der Teilchengröße-Bestimmung ergibt sich durch elektronenmikroskopische Ausmessung. Diese Methode ist aber nur anwendbar, wenn die kondensierte Phase der Cluster fest ist, was auch die quantitative Sammlung auf Glasfaserfilter und die anschließende Mengenbestimmung durch die Neutronenaktivierungsanalyse erlaubt.

Untersucht wurde das Kaliumchlorid/Stickstoff-Gasjetsystem. Die bei 650°C im Rohrofen erzeugten Cluster wurden hinter der Kapillare, die 5 mm oberhalb des Präparateträgers für das Elektronenmikroskop in einer Vakuumkammer endete, aufgefangen. Aus anderen Versuchen erschien diese Sammelbedingung optimal, da der Kernstrahl mit den Clustern noch sehr eng ist, und die Cluster im Vakuumraum auf die sehr dünne Formvar-Folie, die auf einen Kupfernetzträger aufgebracht wurde, treffen und dort haften. Die in Abb. 15 zeigt die Aufnahme der mit 5000facher Vergrößerung elektronenoptisch abgebildeten Cluster. Diese Aufnahme wurde photographisch zweifach vergrößert. Die Lücken stammen von Löchern in der Trägerfolie.



Abb. 15: Elektronenoptische Abbildung von Kaliumchlorid-Clustern. Vergrößerung 10000; 1 cm entspricht $1\text{ }\mu\text{m}$.

Der Durchmesser der vereinzelt als Kristalle erkennbaren Teilchen einer überraschend schmalen Größenverteilung beträgt $(1 \pm 0,2) \cdot 10^{-7}$ m. Nimmt man Kugelgestalt für die Teilchen an, berechnet sich aus dem gemessenen Durchmesser ein Teilchenvolumen von $5,2 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^3$. Ein Teilchen hat dann die Masse von $M = 1,984 \cdot 5,2 \cdot 10^{-16} = 1,0 \cdot 10^{-15} \text{ g}$; dies entspricht $8 \cdot 10^6$ Moleküle/Cluster bzw. $6 \cdot 10^8 \text{ amu/Cluster}$.

Der Massendurchsatz an Clustern des Kaliumchlorid/Stickstoff-Gasjets wurde durch Aktivierung der hinter der Kapillare auf Glasfaserfilter aufgefangenen Cluster bestimmt. Es ergab sich ein Massendurchsatz von $1,2 \cdot 10^5 \text{ g} \cdot \text{h}^{-1}$ oder $3,3 \cdot 10^{-9} \text{ g} \cdot \text{s}^{-1}$, das entspricht bei einem Gasdurchsatz von $20 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ einer Konzentration von $1,7 \cdot 10^{-10} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$. Da über die elektronenoptische Clustervermessung des Clustergewicht bekannt war, beträgt demnach die Kaliumchlorid-Clusterkonzentration $1,7 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-3}$ bei $20 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ Gasdurchsatz.

Zum Vergleich seien Clustergrößen und -konzentrationen anderer Untersuchungen aufgeführt:

10^5 Teilchen/ cm^3 bei einem Teilchendurchmesser von 0,1 bis 1 μm für einen Äthylen-Gasjet bei 1 atm Druck /13/; $3 \cdot 10^7 \text{ amu}$ für Äthylen-Aerosolteilchen oberhalb des kritischen Drucks /18/; 10^6 bis 10^8 amu für Aerosole in einem Helium-Gasjet an einem Cyclotron /21/.

Zum effektiven Transport werden also unabhängig von der Entstehungsgeschichte Aerosole in einem bestimmten Massenbereich und damit auch korrelierten Durchmesser benötigt.

2.4.4. Massenspektrum von Äthylenclustern

Bei der Untersuchung des Äthylen/Stickstoff-Gasjets (1:3) und des Äthan-Gasjets wurden die Aerosole auch im Vakuum auf einer Aluminiumfolie aufgefangen. Der Abstand der Folie von der Kapillare betrug 20 mm. Der Druck im Rezipienten lag bei ca. 0,1 mbar. Dabei wurde nach 20 min Sammelzeit nur für den Äthylen/Stickstoff-Gasjet ein schwachgelber kreisrunder schmieriger Film von einigen Millimetern Durchmesser beobachtet. Die Vermutung, daß es sich dabei um polymerisiertes Äthylen handelte, wurde mit einem Massenspektrometer geprüft. Dafür wurde mit einer ausgeglühten Platindrahtöse ein Teil des Belags (Gasjet ohne Spaltproduktaktivität, d.h. Betrachtungsbetrieb ohne Target) entnommen, in die Probenaufnahmeeinheit des rechnergesteuerten Massenspektrometers (VARIAN MAT CH 7A) gebracht und mit 17 eV angeregt. Das Ergebnis zeigen Abb. 16 und Tab. 8. Eine vollständige Interpretation ist nicht möglich, weil unbekannt ist, in welchem Verhältnis das Äthylen unter den Versuchsbedingungen des Gasjets - durch γ -Strahlung oder Neutronen induziert - zu den verschiedenen Kohlenwasserstoffen polymerisiert. Das Spektrum ist typisch für langkettige Alkane und 1-Alkene, weil i-Alkane und aromatische Kohlenwasserstoffe ein anderes Fragmentverteilungsmuster zeigen /22/. Die Peaks der Massen 154 und 196 sind Kontaminationen unbekannter Herkunft. Die stärksten Peaks jeder Peakgruppe resultieren von $C_nH_{2n+1}^-$ und $C_nH_{2n-1}^-$ -Bruchstücken. Es ist bekannt, daß bei der Fragmentation der Alkane das Intensitätsverhältnis C_nH_{2n-1}/C_nH_{2n+1} mit zunehmender Kohlenstoffzahl (bis ca. 8) steigt, was auf die Bildung von Doppelbindungen in diesem Massebereich hinweist /23/. Diese Zunahme des Quotienten wird auch im vorliegenden Massenspektrum beobachtet. Da das Massenspektrum im Vergleich mit Massenspektren von n-Alkanen doch ein etwas anderes Fragmentmuster zeigt, könnten 1-Alkene zur Fragmentverteilung beigetragen haben. Die einzigen Molekülpeaks sind für das Butan C_4H_{10} (1/Base = 3,0 %) und das Nonan C_9H_{20} (1,2 %) zu sehen. Diese beiden Molekülpeaks können keine Isotopenpeaks sein, weil das Verhältnis $^{12}C: ^{13}C = 98,1:1,1$ beträgt. Das schwerste gefundene Bruchstück ist das $C_{17}H_{35}^+$ -Ion mit 1,2 % Häufigkeit bezogen auf das Butylien. Der Nachweis von niederen Polyäthylenen in den Clustern läßt eine intensivere

Haftung der Spaltprodukt nuklide in diesen Clustern erwarten als zum Beispiel bei Kohlendioxid-Clustern.

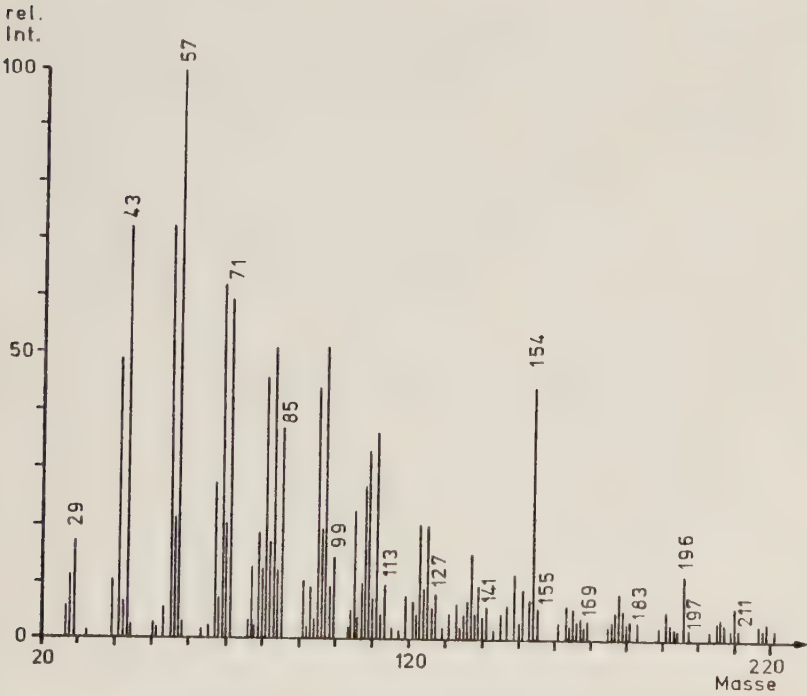


Abb. 16: Massenspektrum von Äthylen-Clustern

Tab. 8: Prozentuale Fragmentverteilung für das Massenspektrum von Äthylenaerosolen. Die Summenverteilung der vorletzten Zeile beginnt für Massen ab 50. Basispeak 12127 ($C_4H_9^+$ = 57). Zahl der Massenregistrierungen 182697

C_n	M	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
2	22	-	-	-	-	-	5,9	11,3	1,4	17,2	-	1,6	-	-	-
3	36	-	-	-	10,5	1,4	49,1	6,6	72,4	4,3	1,4	-	-	-	-
4	50	2,9	2,1	5,8	-	72,3	21,3	100	3,0	-	-	-	-	-	1,6
5	64	-	2,4	1,2	27,5	7,6	62,2	20,3	59,6	-	-	-	-	3,5	13,0
6	78	2,6	19,0	12,6	45,6	17,2	51,6	12,4	37,1	-	1,0	-	-	-	10,0
7	92	2,4	9,2	3,5	44,4	19,6	51,7	9,5	14,6	-	-	-	2,2	5,3	22,0
8	106	4,0	9,9	27,4	33,3	7,5	36,5	4,5	9,9	-	2,0	-	1,6	-	7,8
9	120	-	7,0	4,5	20,2	9,1	20,1	5,8	8,3	1,2	2,1	-	4,7	-	6,4
10	134	2,5	4,6	7,1	15,4	4,8	9,9	4,0	6,0	-	1,8	-	4,8	-	6,3
11	148	1,3	11,9	3,0	9,1	-	7,2	44,9	5,6	-	-	-	-	-	3,1
12	162	-	6,3	2,5	5,5	3,2	3,9	2,4	3,7	-	-	-	-	-	2,5
13	176	3,5	5,0	8,6	5,4	2,8	3,5	1,2	3,3	-	-	-	-	-	2,3
14	190	-	5,2	2,9	2,0	1,8	-	11,7	1,2	-	-	-	-	-	1,7
15	204	-	3,5	4,2	3,2	1,2	1,9	6,2	2,0	-	-	-	-	-	2,9
16	218	2,1	3,0	-	1,9	-	-	1,0	1,3	-	-	-	-	-	-
17	232	-	-	-	-	-	-	-	1,2	-	-	-	-	-	-
Summe C_nH_{2n+x}															
normiert auf		6,7	27,8	24,6	68,4	23,3	100	45,3	79,4	1,3	2,2	-	4,2	2,7	25,0
auf C_nH_{2n-1}															
Fragmentformel C_nH_{2n+x} , $x =$					-3	-2	-1	0	+1	+2	+3				

2.5. Zusammenfassung

Im Kapitel über Gasjet-Transportsysteme wurden der Äthylen/Stickstoff-, Äthan-, Kohlendioxid- und Kaliumchlorid/Stickstoff-Gasjet behandelt. Die Grundlage für die Gasjets ist die Aerosolerzeugung. Die Transportsysteme arbeiten nur, wenn in der Kapillare als Leitungsweg laminare Strömung herrscht. Am Reaktor wurden hauptsächlich ein Äthylen/Stickstoff- und Kaliumchlorid/Stickstoff-Gasjet betrieben. Die Bedingungen waren 2 bar Kammerdruck und ca. $20 \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ Gasdurchsatz bei 7 und 8 m langen Kapillaren aus Polyäthylen mit 1 mm Innendurchmesser. Die Transportausbeuten lagen maximal um 70 % und die Transportzeit betrug minimal ungefähr 0,6 s. Bei Feststoffaerosol-Gasjets wurden diese Ausbeuten bei Clustererzeugungstemperaturen 100 bis 150 K unter dem Schmelzpunkt der eingesetzten Alkalihalogenide gefunden. Die Größe der die Aktivität tragenden Cluster konnte für den Äthylen/Stickstoff-Gasjet mit $1 \text{ }\mu\text{m}$ abgeschätzt werden und für den Kaliumchlorid/Stickstoff-Gasjet mit $0,1 \text{ }\mu\text{m}$ gemessen werden. Die Kaliumchlorid-Aerosolkonzentration lag bei etwa $10^5 \text{ Teilchen/cm}^3$ bei Teilchenmassen um $6 \cdot 10^8 \text{ amu}$. Der Äthylen/Stickstoff-Gasjet eignet sich besonders für anschließende Gasphasenreaktionen (Thermochromatographie), während der Kaliumchlorid/Stickstoff-Gasjet besser für naßchemische on-line Trennverfahren geeignet ist, da die Ablösung der Spaltproduktaktivität von den organischen Clustern durch eine teilweise Polymerisierung des Äthylens behindert wird. Nur ein Gasjet mit anorganischen Clustern ist auch für den Massenseparator geeignet, da organisches Material in der heißen Ionenquelle gebräckt wird.

3. Kontinuierliche Trennung von Spaltprodukten mit dem Gasjet-SISAK-System

Die hohen Transportausbeuten von Äthylen/Stickstoff- und Kaliumchlorid/Stickstoff-Gasjets lassen die Kopplung an ein on-line Trennverfahren effektiv erscheinen. Die Untersuchung von Nukliden aus dem komplexen Produktgemisch der Kernspaltung erfordert eine Auftrennung nach Ordnungszahl bzw. Massezahl. Erreicht man eine gute Ablösung der Nuklide von den Clustern oder ist eine schnelle Lösung der Cluster möglich, dann bietet sich der Einsatz des SISAK-Systems an. SISAK ist die Abkürzung für

Short-lived Isotopes Studied by the AKuvfe-technique. Mit den beiden letzten Buchstaben wird die ursprüngliche Verwendung des wichtigsten Teils des SISAK-Systems, der H-Zentrifugen, berührt, die später beschrieben werden. AK steht für AKUFVE:

A nordning för	Anordnung für
K ontinuerlig	Kontinuierliche
U ndersökning av	Untersuchung von
F ördelningsfaktorer vid	Verteilungsfaktoren mit
V ätske	wässriger
E xtraktion	Extraktion

Die Entwicklung kontinuierlich arbeitender Zentrifugen, wie sie im SISAK-System /24/ verwendet werden, waren das Ergebnis einer schwedisch-norwegischen Zusammenarbeit. Mit den Zentrifugen wird eine gute kontinuierliche Phasentrennung von Lösungsmittel-Gemischen mit Komponenten unterschiedlicher Dichte erreicht /26/, solange sich die Komponenten nur unwesentlich ineinander lösen. Vor der Beschreibung der Kopplung des Gasjets an das SISAK-System und des Ablaufs einer Trennung anhand eines Trennverfahrens für Cer, seien das Funktionsprinzip der Zentrifugen und einige technische Daten beschrieben.

3.1. Die H-Zentrifugen

Es wurden zwei im Bauprinzip identische Zentrifugentypen verwendet /26/: ein Typ für ca. 100 cm^3 Trennvolumen/Phase (H 100 in SISAK I) und ein Typ mit ca. 12 cm^3 Trennvolumen/Phase (H 10 in SISAK II). Den Aufbau einer Zentrifugeneinheit zeigt Abb. 17. Die Einheit sitzt direkt auf einer Motortriebachse eines 3-Phasen-Asynchronmotors. Die

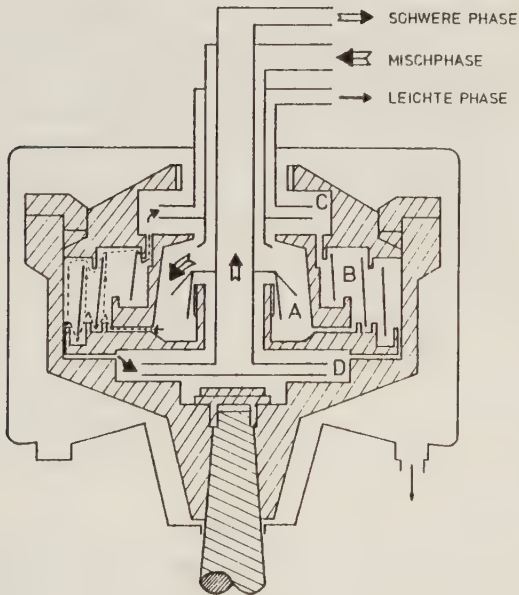


Abb. 17: Schnittbild durch eine H-Zentrifuge mit markiertem Phasen-Trennverlauf

maximale Drehzahl des Motors liegt bei 25000 min^{-1} (H 10) und wird gesteuert mit einem frequenzmodulierten Wechselstrom mit maximal 400 s^{-1} . Das durch Zahnradpumpen (Pumpenkörper aus Titan, Zahnräder aus Polytetrafluoräthylen, Förderleistung maximal $30 \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$) oder hydrostatischen Druck zentral eingespeiste Lösungsmittelgemisch (Mischphase in Abb. 17) wird in Raum A auf die Umdrehungszahl der

Zentrifuge beschleunigt und tritt dann in den Raum B ein, wo die Trennung in die leichte und die schwere Komponente erfolgt. Dieser Raum B besteht in Blickrichtung der Zentrifugendrehachse aus acht durch radiale senkrechte Wände voneinander getrennten Kammern, die symmetrisch zur Rotationsachse stehen (Winkel zwischen den Wänden 45°). Der Schnitt in Abb. 17 geht durch die Zentrifugenachse und man sieht links und rechts den Schnitt durch je drei geneigte periphere Scheidewände von Kammern, zwischen denen drei weitere Kammern liegen, also Scheidewände z.B. der ersten und fünften Kammer. Die Flüssigkeit macht eine Zick-Zack-Bewegung, die ihr von den Scheidewänden mit kammförmigen Erhöhungen ("baffle ridges") aufgezungen wird. Nach der Trennung erreicht die leichte Phase den Raum C und die schwere Phase den Raum D. Von diesen Sammelkammern werden die getrennten Phasen durch Pumpräder mit spiraligen Ausfräsungen (parallel zur Zentrifugenachse) transportiert und dort bei den Positionen schwere und leichte Phase (Abb. 17 oben) entnommen. Die spiraligen Ausfräsungen des Pumprades sind für spezifisch leichtere Lösungsmittel enger als für spezifisch schwerere Lösungsmittel. Die Güte der Phasentrennung kann sowohl mit photometrischen Methoden als auch visuell überprüft werden. Die Trennung der Phasen ist besser als 1:1000, wenn man in Schaulöschrohren, die in den Weg nach Trennung der Phasen eingebaut sind, keine Trübung der Phasen mehr beobachtet, da das Auge Phasenvermischungen größer 0,1 % als Trübung erkennt /27/.

Alle mit den Lösungsmitteln in Berührung kommenden Teile der Zentrifugen (Hersteller: MEAB Metalextraktion AB, Göteborg, Schweden) bestehen aus Titan wegen dessen chemischer Resistenz gegen anorganische Säuren auch höherer Konzentration. Die Resistenz des Titans wird noch wesentlich erhöht durch Zulegierung von 0,2 % Palladium. Sowohl die Schaulöschrohren aus Glas als auch die Polytetrafluoräthylen-Ventile, mit denen der Durchsatz der getrennten Phasen geregelt werden kann, sind Bestandteil eines mit der Zentrifugeneinheit verbundenen Kopfes. Vor Eintritt in die Zentrifuge durchläuft die Mischphase noch einen statischen Mixer. Dieser Mischer aus Glas hat einen starren Einsatz aus Stahl oder Glas, der so gebaut ist, daß rechteckige Platten (5x6x1 mm BxLxT) über die diagonalen Enden verdreht sind und immer so aufeinanderfolgen, daß die Strömungsrichtung zwangs-

läufig um $+90^\circ$, dann um -90° ... umgedreht wird. Die Platten sind rechtwinklig jeweils an den Endpunkten der längeren Mittelhalbierenden aufeinandergesetzt und verbunden (bei Stahl und Titan durch Punktschweißung, bei Glas durch Anschmelzen). Ungefähr zwanzig so verbundene Platten erzwingen eine optimale Durchmischung beider Phasen.

Die Zentrifugen vom Typ H 100 haben mit 3 s eine für die Untersuchung von Nukliden im Halbwertszeitbereich von Sekunden zu lange Trennzeiten der Phasen. Aus diesem Grund wurde nach erfolgreichem Einsatz des SISAK I-Systems in Verbindung mit dem Gasjet der Zentrifugentyp H 10 gebaut. Ein Vergleich zwischen beiden SISAK-Systemen ist in Tab. 9 zusammengestellt. Unter der totalen Transportzeit der mit beiden Systemen untersuchten Nuklide ist die Zeit zu verstehen von der Erzeugung der Nuklide im Target bis zum Nachweis eines Nuklids durch den Detektor nach der Abtrennung aus dem komplexen Spaltproduktgemisch.

		SISAK I	SISAK II
Zentrifugenvolumen	/cm ³	100	12
Phasentrennzeit	/s	3	0,4
maximaler Volumendurchsatz	/(cm ³ s ⁻¹)	17	23
pro Phase			
maximale Drehzahl	/min ⁻¹	18000	20000
totale Transportzeit von	/s	13,5	4,9
der Erzeugung eines			
Nuklids bis zur Detektion			
bei drei Zentrifugentrennschritten			

Tab. 9: Vergleich der Betriebsdaten von SISAK I und II /28/

3.2. Ablauf einer Elementtrennung (Cer-Chemie)

An einem Trennverfahren für Cer sei der Ablauf einer Abtrennung von Nukliden dargestellt, die im komplexen Spaltproduktgemisch mit einem Äthylen/Stickstoff-Gasjet (1:4) angeliefert wurden. In Abb. 18 ist das Fließschema gezeigt. Die Extraktionsschritte selbst wurden bereits früher /29/ für schnelle Cerabtrennungen mit dem SISAK I-System herangezogen; neu ist die Ankopplung des Gasjets.

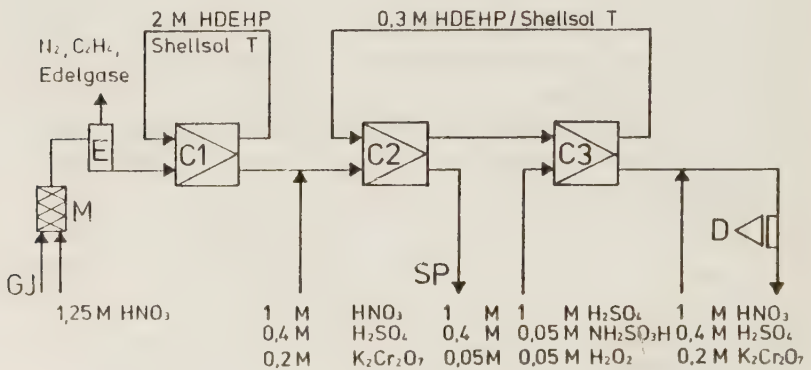


Abb. 18: Flußdiagramm der Cerabtrennung mit SISAK I /29/

GJ Gasjet, M Mixer, E Entgasungszelle, C Zentrifugen-Mischer-Einheit, SP Spaltprodukte, D Detektor

Die Aktivität wurde durch die Bestrahlung eines 500 µg ²³⁵U-Targets mit thermischen Neutronen erzeugt und vom Gasjet zum SISAK I-System transportiert. Dort erfolgte die intensive Vermischung mit 1,25 M Salpetersäure im statischen Mixer M. Die Säure wurde mit einer Zahnradpumpe gefördert. Die Temperatur der Lösung wurde deshalb auf ca. 90° C gehalten, weil nur bei hohen Temperaturen die weitgehende Ablösung der Spaltproduktaktivität von den Äthylenclustern möglich war. Nach der sehr kurzen Verweilzeit von ca. 0,1 s im Mischer gelangte das Gas-Lösungsgemisch tangential einlaufend in die

runde Entgasungszelle E. Auf die Entgasungszelle aus Glas war ein Intensivkühler aufgesetzt. Mehr als 95 % der Edelgase aus der Spaltung, andere flüchtige Spezies und das Transportgas Stickstoff verließen die in die Entgasungszelle eingelaufene Mischung und wurden über das Absaugsystem der Reaktorhalle abgeführt.

Die Lösung selbst gelangte dann zum trichterförmigen Ende der Entgasungszelle und wurde von dort mit einer Zahnrادpumpe zur ersten Zentrifugen-Mischer-Einheit C 1 gepumpt. Dort wird die wässrige Phase mit einer von einer weiteren Zahnrادpumpe im Kreislauf geführten 2 M Lösung von Di-(2-Äthylhexyl)-orthophosphorsäure in Shellsol T vermischt. In der organischen Phase blieben die Elemente Y, Zr, Nb, Mo und teilweise Br und J, während das dreiwertige Cer und die Lanthaniden nach Abtrennung in C 1 in der wässrigen Phase weitertransportiert wurden. Die Abtrennung des Cers von den übrigen Lanthaniden geschieht durch Oxidation der Cers in den vierwertigen Zustand durch Zugabe einer Oxidationslösung bestehend aus 1 M Salpetersäure, 0,4 M Schwefelsäure und 0,2 M Kaliumdichromat mit einer Zahnrادpumpe vor C 2. Das Oxidationspotential des Dichromat-Ions in saurer Lösung reicht für die Überführung des dreiwertigen Zustand des Cers in den vierwertigen nur aus, wenn der vierwertige Zustand zum Beispiel durch Komplexbildung stabilisiert wird. Die Stabilisierung ist durch Sulfationen möglich, weshalb Schwefelsäure Bestandteil der Oxidationslösung war. Aus dieser Oxidationslösung wurde nach intensiver Vermischung mit 0,3 M HDEHP-Lösung in Shellsol T, die als zweite organische Phase im Kreislauf gepumpt wurde, das Cer quantitativ in die organische Phase extrahiert. Die erste wässrige Phase mit den restlichen Spaltprodukten wurde der Abfallbeseitigung zugeführt. Das vierwertige Cer in der zweiten organischen Phase mußte nun für die Rückextraktion in die wässrige Phase reduziert werden. Das geschah durch intensive Vermischung mit einer Reduktionslösung aus 1 M Schwefelsäure, 0,05 M Amidosulfonsäure und 0,05 M Wasserstoffperoxid. Nach C 3 befand sich nun das dreiwertige Cer in der wässrigen Phase, das zur Adsorption an einer HDEHP/PVC-Kolonne erneut durch Zugabe einer Oxidationslösung aus 1 M Salpetersäure, 0,04 M Schwefelsäure und 0,2 M Kaliumdichromat in den vierwertigen Zustand überführt wurde.

An diesem System wurden auch die Ausbeuten durch Messung der Ak-

tivität mit Ge(Li)-Detektoren nach den einzelnen Trennschritten bestimmt. Mehr als 90 % der angelieferten Cer-Aktivität verlassen C 1, davon gelangen 80 % in die organische Phase nach C 2; von dieser Aktivität wird 70 % nach C 3 erhalten (Rückextraktion). Es wurden 55 % der vor C 2 vorhandenen Cer-Aktivität bei D gemessen. Bei 60 % Ausbeute des Gasjets betrug die Ausbeute (erzeugte Aktivität/bei D gemessene Aktivität) 30 % ($0,6 \times 0,9 \times 0,8 \times 0,7$ bzw. $0,6 \times 0,9 \times 0,55$).

Mit dem beschriebenen Gasjet-SISAK-System wurden die Nuklide ^{147}Ce (56 s), ^{148}Ce (48 s), ^{145}Ce (3 min) und ^{146}Ce (13 min) in der Cerfraktion nachgewiesen und deren γ -Spektren gemessen /25/.

3.3. Weitere Trennverfahren (Lanthan, Praseodym, Zirkonium/Niob)

Die in Abb. 19 im Fließschema gezeigte Lanthan-Chemie basiert auf der Abtrennung der Lanthaniden als Gruppe mit anschließender Trennung der Cers als Cer(IV) /29/.

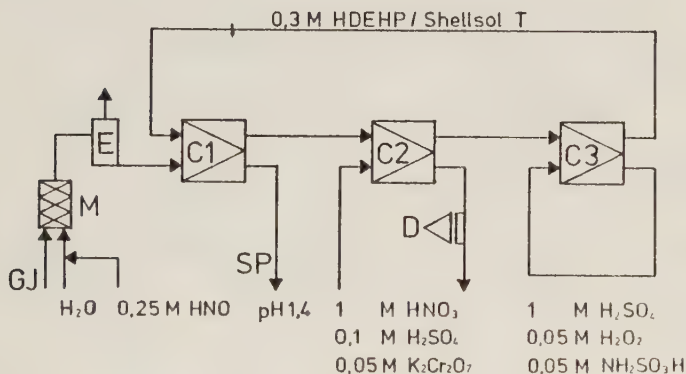


Abb. 19: Flußdiagramm der Lanthanabtrennung mit SISAK I /30/
GJ Gasjet, M Mixer, E Entgasungszelle, C Zentrifugen-Mischer-Einheit, SP Spaltprodukte, D Detektor

Im ersten Trennschritt werden die dreiwertigen Lanthaniden, sowie Zirkonium, Niob und andere Spaltprodukte aus der 90° C heißen salpetersauren Lösung (pH = 1,4) in die organische Phase mit 0,3 M HDEHP in Shellsol T extrahiert. Im zweiten Trennschritt C 2 bleibt das Cer nach der Oxidation mit einer Lösung aus 1 M Salpetersäure, 0,1 M Schwefelsäure und 0,05 M Kaliumdichromat in der organischen Phase, während das Lanthan in die wässrige Phase zurückextrahiert wird und zur Messung gelangt. Der dritte Schritt dient der Reinigung der organischen Phase.

Mit der beschriebenen Chemie wurden die Nuklide ^{143}La , ^{144}La , ^{145}La und ^{146}La abgetrennt, ihre Halbwertszeiten bestimmt und durch

γ -singles- sowie $\gamma\gamma$ -Koinzidenzmessungen partielle Zerfallsschemata aufgestellt. Die gefundenen Halbwertszeiten waren für das ^{144}La $42,1 \pm 0,7$ s, für das ^{143}La $14,23 \pm 0,14$ s, für das ^{145}La $25,2 \pm 2,6$ s und für das ^{146}La $8,5 \pm 1,0$ s /30/.

Auch die in Abb. 20 gezeigte Praseodym-Chemie /29/ baut auf dem Verhalten der verschiedenen Oxidationsstufen des Cers und der Lanthaniden auf. Eine Besonderheit ist die Einschaltung einer Verzögerung zwischen C 2 und C 3, die der Nachbildung von Praseodymnukliden durch den β^- -Zerfall von Cerisotopen dient, die in C 3 aus der verhaltigen organischen Phase rückextrahiert werden.

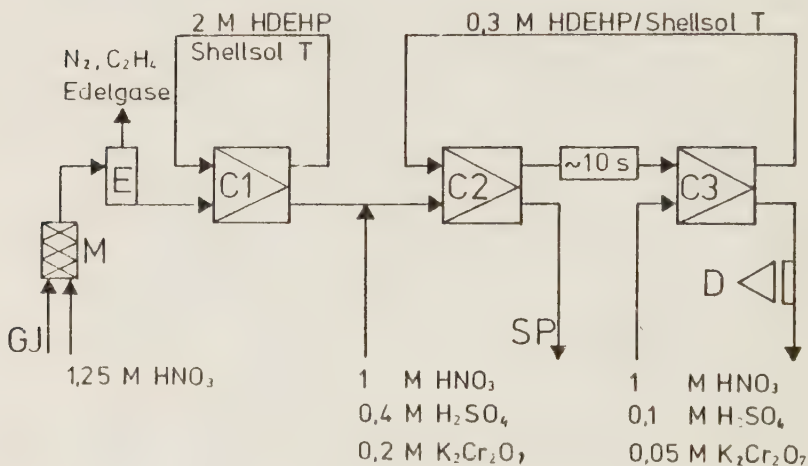


Abb. 20: Flußdiagramm der Praseodymabtrennung mit SISAK I /31/
GJ Gasjet, M Mixer, E Entgasungszelle, C Zentrifugen-Mischer-Einheit, SP Spaltprodukte, D Detektor

Mit der Praseodym-Chemie wurden neben längerlebigen Praseodymisotopen das ^{150}Pr mit 6 s Halbwertszeit nachgewiesen /31/.

Ein Beispiel für die Ausnutzung der Möglichkeit, gleichzeitig zwei chemisch unterschiedlich reagierende Elemente aus dem Spaltproduktgemisch abzutrennen und zu messen, wird in Abb. 21 gezeigt /32/. Diese komplizierte Methode setzte zum ersten Male die Durchführung von vier Trennschritten voraus, was den Einsatz von Zentrifugen mit nied-

rigerem Trennvolumen pro Phase als bisher erforderte. In Verbindung mit dem neuen SISAK II-System wurde wegen der schnellen quantitativen Löslichkeit von Kaliumchlorid auch zum ersten Mal ein Kaliumchlorid/Stickstoff-Gasjet angekoppelt. Das in den ersten beiden Stufen verwendete Extraktionsagens Alamin 336 ist ein Gemisch tertiärer Amine mit n-Alkanketten ($C_8 - C_{10}$).

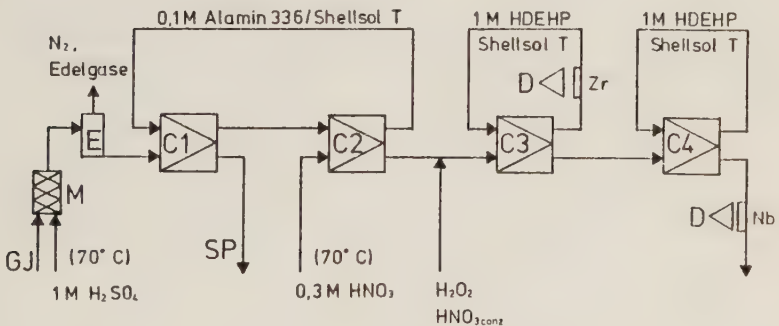


Abb. 21: Flußdiagramm der gleichzeitigen Abtrennung von Zirkonium und Niob mit SISAK II /32/

GJ Gasjet, M Mixer, E Entgasungszelle, C Zentrifugen-Mischer-Einheit, SP Spaltprodukte, D Detektor

Die mit dem Kaliumchlorid/Stickstoff-Gasjet gelieferte Spaltproduktaktivität wurde mit einer 1 M schwefelsauren Lösung von 70°C gemischt. Im ersten Trennschritt (C 1) wurden Zirkonium, Niob und einige Störelemente (Molybdän, Technetium) in die organische Phase extrahiert. Im zweiten Trennschritt wurden Zirkonium und Niob mit $0,3\text{ M}$ Salpetersäure rückextrahiert, während die Störelemente in der organischen Phase verbleiben. Das vor dem dritten Trennschritt (C 3) mit Wasserstoffperoxid komplexierte Niob bleibt bei der erhöhten Salpetersäurekonzentration in der wässrigen Phase, während mehr als 90% des Zirkoniums mit HDEHP in die organische Phase extrahiert wurde, die

γ -spektroskopisch untersucht wurde. Im vierten Trennschritt (C 4) wurde aus der wässrigen Phase das Zirkonium vollständig entfernt und es konnte die reine Niobfraktion gemessen werden.

In den mit Ge(Li)-Detektoren aufgenommenen Spektren der Zirkonium- und Niob-Chemie konnten die neutronenreichen Nuklide beider Elemente bis zum ^{100}Zr (7,1 s) und ^{104}Nb (4,8 s) identifiziert werden /58/.

3.4. Kontinuierliche Technetium-Abtrennung mit Tetraphenylarsoniumchlorid

Die neutronenreichen Nuklide um die Massenzahl $A = 100$ haben Interesse wegen ihrer Kerneigenschaften. Für diese Kerne wurden stabile Quadrupoldeformationen vorhergesagt /33/. Untersuchungen an g,g-Rutheniumkernen /34, 35/ sollten die theoretischen Voraussagen bestätigen. Für die Untersuchung der interessierenden Niveaus im Ruthenium aus dem β^- -Zerfall der Nuklide des Technetium existierte bisher nur ein diskontinuierliches chemisches Verfahren /36/. Da die offline Chemie des Technetiums für den gefragten Massebereich wegen der zu kurzen Halbwertszeiten und der geringen Spaltausbeute der Nuklide zu aufwendig ist, wenn man für die Aufstellung der Zerfalls-schemata eine sichere Statistik der gemessenen Zerfalleigenschaften erreichen will, bietet sich ein kontinuierliches Verfahren zur Abtrennung für die Messung der Zerfalleigenschaften an.

Der erste Versuch einer on-line Technetium-Abtrennung bestand in der Übertragung des diskontinuierlichen Verfahrens /36/ auf das SISAk-System. Bei der diskontinuierlichen Methode wird die in einer Kapsel bestrahlte Spaltstofflösung mit einer schnellen Rohrpostanlage (0,2 s) zu einer automatisch gesteuerten Trennapparatur transportiert und zerschellt dort. Nach heterogenem Ionenaustausch von Brom und Jod an Silberchloridböden wird das Technetium im Filtrat mit einer Oxidationslösung in die siebenwertige Form überführt. Die Lösung wird nun über einen Chromosorb-boden gesaugt, auf dem Tetraphenylarsoniumchlorid in Chloroform aufgezogen ist. Dieses Reagens extrahiert Technetium als Pertechnetat. Nach Waschen des Bodens zur Entfernung der anderen Elemente aus der Kernspaltung wird der Tetraphenylarsoniumchloridboden mit 2 M Salpetersäure unter Zusatz von Ammoniumperrhenat eluiert und das Eluat in eine wässrige Lösung von Tetraphenylarsoniumchlorid gesaugt; hierbei bildet sich ein Niederschlag von Tetraphenylarsoniumperrhenat, der die Technetiumaktivität mitfällt. Der Niederschlag wird abfiltriert, gewaschen und als Tetraphenylarsoniumperrhenat(technetat)-Präparat zur abgeschirmten Meßposition geschossen. Die Zeitspanne vom Ende der Bestrahlung bis zum Meßbeginn beträgt 7,5 s.

Bei einer kontinuierlichen Lösungsmittelextraktion muß die Oxidation

zum siebenwertigen Technetium innerhalb der Mischer-Durchlaufzeit vor dem ersten Trennschritt stattfinden. Um den Bedarf an organischem Lösungsmittel Chloroform und an Extraktionsagens Tetraphenylarsoniumchlorid niedrig zu halten, ist es sinnvoll, die organische Phase im Kreislauf zu führen. Damit ergibt sich aber die Schwierigkeit, die günstigste Konzentration an Salpetersäure zu finden, da die Rückextraktion von der Nitratkonzentration abhängt, denn eine hohe Nitrationenkonzentration führt zu einer schlechteren Rückextraktion des Pertechneatations. Im Folgenden wird das gewählte Trennsystem und die Variationen der Reaktionsparameter beschrieben. Die mit dem Kaliumchlorid/Stickstoff-Gasjet angelieferte Spaltprodukt-Aktivität mußte im Mixer M (Abb. 22) mit einer sauren Oxidationslö-

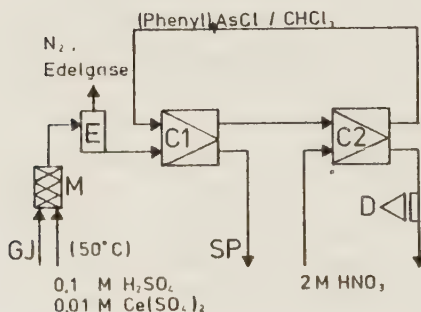


Abb. 22: Off-line Chemie für Technetium auf das SISAK-System übertragen

GJ Gasjet, M Mixer, E Entgasungszelle, C Zentrifugen-Mischer-Einheit, SP Spaltprodukte, D Detektor

sung hohen Oxidationspotentials gemischt werden. Als Oxidationsmittel sind geeignet saure Lösungen von vierwertigem Cer, Peroxodisulfat-Ionen oder Bromat-Ionen. Ausgewählt wurde Cer(IV)-Sulfat wegen seiner Beständigkeit in saurer Lösung und als Säure Schwefelsäure.

Diese Kombination hat den Vorteil, daß Verdrängungsreaktionen des Nitrations gegen das Pertechnetat-Ion ausgeschlossen sind, und daß die von der Rückextraktion des Technetiums im zweiten Trennschritt herrührende Nitratkonzentration in der organischen Phase bei Kontakt mit der Schwefelsäure im ersten Trennschritt durch Verdünnung herabgesetzt wird. Dadurch wird im ersten Trennschritt wieder Tetraphenylarsonium zur Reaktion mit dem Pertechnetat-Ion fähig.

Der Vergleich zwischen der Technetiumaktivität in der organischen Phase ohne und mit 0,01 M Cer(IV)sulfat in der 0,1 M Schwefelsäure erbrachte eine um 40 % höhere Extraktion in die organische Phase, was darauf hindeutet, daß ein Großteil der angelieferten Technetiumaktivität vierwertig vorlag. Die schwefelsaure Oxidationslösung war dabei auf 50° C aufgeheizt, da bei 20° C keine signifikante Oxidation bei der kurzen Kontaktzeit erfolgte. Die Verlängerung der Kontaktzeiten der Lösungen durch Zuschalten eines zweiten Mixers hatte die doppelte Technetiumaktivität in der organischen Phase zur Folge, doch wurde dabei auch eine Zunahme der Edelgasaktivität beobachtet. Die optimale Salpetersäurekonzentration für die Rückextraktion lag beim Vergleich zwischen 1 M, 2 M und 3 M bei der 2 M Säure, wenn auch bei der 3 M Säure kurzfristig eine höhere Rückextraktionsausbeute festzustellen war. Man konnte in diesem Fall schnell eine Verfärbung und Trübung der organischen Phase erkennen. Die Ursache war eine zu starke Anreicherung der organischen Phase mit Salpetersäure wegen schwer zu regulierender Phasentrennung bei C 2 in der Anlaufphase des Systems. Dieser wässrige Anteil gelangte in das Vorratsgefäß für den organischen Lösungsmittelkreislauf und bewirkte wegen Zersetzung des Tetraphenylarsonium-Ions eine schnell fallende Ausbeute in der Technetiumfraktion.

Die geschilderte Empfindlichkeit des chemischen Systems mit Tetraphenylarsoniumchlorid als spezifisches Extraktionsagens machte deutlich, daß dieses Reagens für einen störungsfreien Verlauf eines Langzeitexperimentes nicht geeignet war. Dazu kamen als weitere Argumente die zu geringen Ausbeuten für Technetiumisotope und die Kontaminationen der bei D gemessenen Technetiumfraktion mit Edelgas- und Halogenaktivitäten.

Deshalb wurde ein anderes Trennverfahren geprüft, das Alamin 336 als extrahierendes Agens enthielt.

3.4.1. Kontinuierliche Technetiumabtrennung mit dem Alamin 336/HDEHP-System

Die Prüfung einer Extraktionschemie für Technetium mit Alamin 336 als Extraktionsagens wurde an ^{99m}Tc (6,02 h) durchgeführt, welches aus bestrahltem Molybdän (^{99}Mo , 66,02 h) gemolken wurde. Da die Extraktion auch hier nur mit siebenwertigem Technetium funktioniert, wurde mit Cer(IV) oxidiert. Die Extraktionen wurden sowohl aus unterschiedlich konzentrierten Säuren (Salzsäure, Schwefelsäure, Salpetersäure) als auch mit zwei Lösungsmitteln für Alamin, Shellsol T und Chloroform, ausgeführt. Gleiche Volumina der sauren Lösungen mit bekannter Technetiumaktivität und der Extraktionslösungen wurden eine Minute mechanisch geschüttelt, eine Minute zentrifugiert und die getrennten Phasen gemessen. Die Alaminkonzentration betrug 0,3 M, doch ist zur Erhöhung der Rückextraktionsausbeute auch eine 0,05 M Lösung geeignet. Shellsol T als Lösungsmittel der organischen Phase schied aus, da z.B. Extraktionen aus salpetersauren Lösungen bei der Phasentrennung eine nicht scharf abgegrenzte Mischphase ergeben, die den Hauptteil der Aktivität enthielt. Eine weiße Trennschicht war nach der Phasentrennung von Alamin/Chloroform-Salzsäure und -Schwefelsäure-Gemischen für Säurekonzentrationen kleiner 1 M zu beobachten. Die Extraktionsausbeuten lagen bei den salzsauren Lösungen zwischen 84 % (7 M) und 100 % (0,05 M), für schwefelsaure Lösungen zwischen 96 % (8 M) und 99 % (0,1 M). Keine Komplikationen ergaben sich bei der Extraktion aus salpetersauren Lösungen, wo ein kontinuierlicher Anstieg der Ausbeute von 33 % (7 M) bis 98 % (0,5 M) und vollständige Extraktion des siebenwertigen Technetiums aus 0,1 bis 0,01 M Salpetersäure festzustellen war. Die Rückextraktion aus 0,05 M Alamin/Chloroform-Lösung war mit 72 % am höchsten beim Einsatz von 2 M Salpetersäure als wässrige Rückextraktionsphase. Das in Abb. 23 gezeigte Technetium-Trennverfahren bot die optimalen Bedingungen für hohe Ausbeute.

Das komplexe Spaltproduktgemisch aus der Spaltung von ^{239}Pu (200 µg) mit thermischen Neutronen (höhere Kettenausbeute für die schwereren Massen der leichten Bruchstücke der Spaltung) wurde mit einem Kaliumchlorid/Stickstoff-Gasjet angeliefert und im Mixer M mit

einer 90° C heißen Oxidationslösung (0,1 M Salpetersäure, 0,05 M Kaliumbromat) intensiv vermischt. Das Oxidationsmittel Kaliumbromat bot die Gewähr, daß keine Fällungsreaktionen zu erwarten waren. In der anschließenden Entgasungszelle E wurde der Stickstoff und 95 % der Spaltedelgase entfernt. Der Rest der Edelgase konnte durch Chloroform-Extraktion in die erste organische Phase entfernt werden; dies ist auch der Grund für die Nichtanwendung von Shellsol T als organisches Lösungsmittel. In der ersten organischen Phase wurden mit der 0,05 M Alamin 336-Lösung die Isotope des Technetiums, Molybdäns und Zirkoniums sowie in geringerem Umfang weitere Störnuklide extrahiert (C 1).

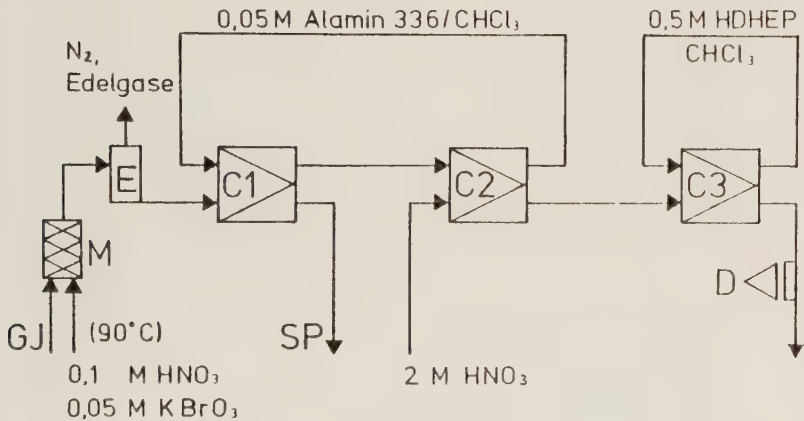


Abb. 23: Flußdiagramm für Technetiumabtrennung

GJ Gasjet, M Mixer, E Entgasungszelle, C Zentrifugen-Mischer-Einheit, SP Spaltprodukte, D Detektor

Niob und der Rest der Spaltprodukte verblieben in der wässrigen salpetersauren Phase. Das Technetium wurde im zweiten Trennschritt (C 2) mit 2 M Salpetersäure rückextrahiert, wobei auch ein Teil des Zirkoniums in die wässrige Phase gelangte. Dieses wurde im dritten Schritt (C 3) mit einer HDEHP-Lösung in Chloroform extrahiert. Das

jetzt reine Technetium (und zwischenzeitlich gebildete β^- -Zerfallsprodukte) wurden in der wässrigen Phase dem Detektor D zugeführt. Pulsbestrahlungen ermöglichten die Bestimmung der Zeiten, in denen die einzelnen Trennschritte abliefen. Diese Zeiten sind abhängig von den Flußraten der Lösungen. Für eine Flußrate von $10 \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ pro Phase erhielt man 50 % der Gesamtaktivität hinter C 2 5,5 s nach Erzeugung durch den Neutronenimpuls, während sich dieser Wert auf 7,0 s erhöhte, wenn bei gleicher Flußrate die Messung hinter C 3 erfolgte (Abb. 24). Zum Vergleich beginnt die Messung der Technetiumaktivität bei der off-line Chemie 7,5 s nach dem Neutronenimpuls.

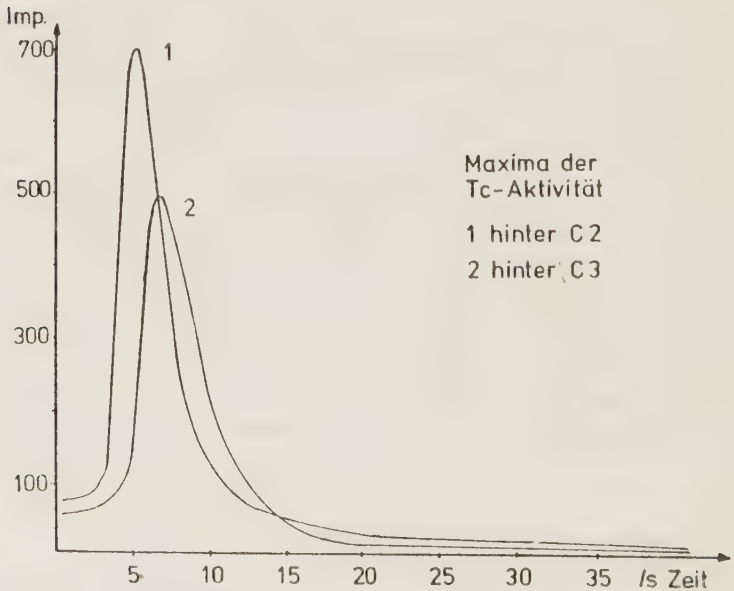


Abb. 24: Technetium-Gammastrahlungsaktivität nach Neutronenimpuls, gemessen hinter den einzelnen Trennschritten

Diese Anordnung Gasjet-SISAK II wurde für detaillierte kernspektroskopische Untersuchungen an den neutronenreichen Technetiumnukliden ^{106}Tc (36 s), ^{107}Tc (27 s) und ^{108}Tc (5 s) mittels γ -singles-, $\gamma\gamma(t)$ -Koinzidenz- und Winkelkorrelationsmessungen herangezogen. Als

Beispiel wird im nächsten Abschnitt das γ -single-Spektrum der Technetium-Fraktion gezeigt, welches 30 h lang on-line aufgenommen wurde. Es sind in diesem Spektrum nur die stärksten Linien gekennzeichnet, doch konnten auch die restlichen Linien den Technetiumisotopen ($^{101-108}\text{Tc}$) und deren Folgeprodukten größtenteils zugeordnet werden. Zur Zuordnung der Linien im γ -single-Spektrum waren die gleichzeitig gemessenen Koinzidenzen notwendig, welche auch zur Aufstellung der Zerfallsschemata des ^{107}Tc /37/ und der Nuklide ^{104}Tc , ^{106}Tc und ^{108}Tc /38/ verwendet wurden.

An geringen Kontaminationen traten Molybdän und Jod auf, was durch Mitreißeffekte und der doch nicht zu vernachlässigenden Lösung der Lösungsmittel untereinander erklärt werden könnte.

3.4.3. Spektrum der Technetium-Fraktion

Das in Abb. 25a und b gezeigte γ -single-Spektrum wurde mit einem Ge(Li)-Detektor mit 48 cm³ aktivem Volumen aufgenommen (Nachweiswahrscheinlichkeit bei 1332 keV 8,3 % bezogen auf einen 3"x3" NaJ-Kristall; Auflösung bei 1332 keV 2,1 keV FWHM). Die Signale wurden mit dem System "JUMBO" verarbeitet /39,40/. Eine ausführliche Beschreibung der Meßanordnung ist bei Stachel-Häussler zu finden /37/.

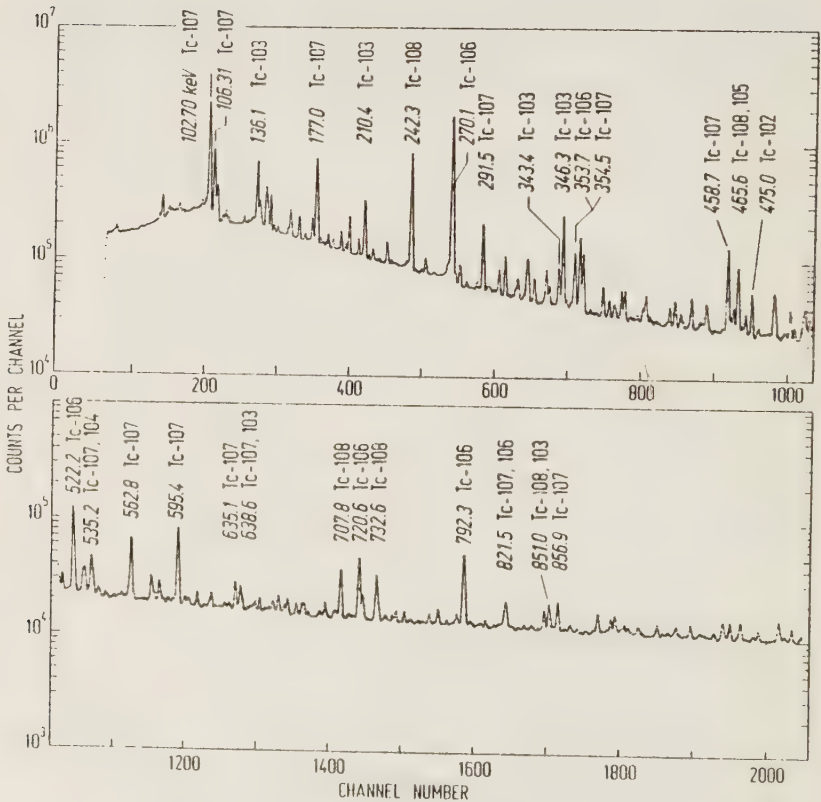


Abb. 25a: γ -Spektrum der Technetiumfraktion nach chemischer Abtrennung mit dem Gasjet-SISAK II-System.
30 h on-line gemessen. Energiebereich 1 - 2048 keV.

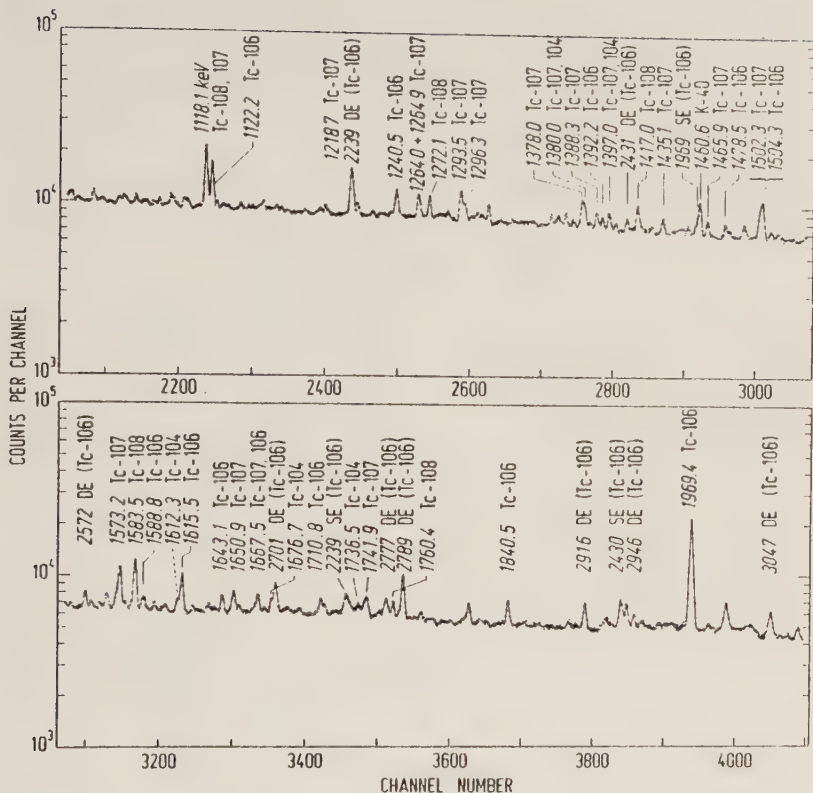


Abb. 25b: γ -Spektrum der Technetiumfraktion nach chemischer Abtrennung mit den Gasjet-SISAK II-System.
30 h on-line gemessen. Energiebereich 2049 - 4096 keV.

Die in Tab. 10 gelisteten Werte wurden erhalten durch Messung der Technetiumfraktion mit einem Ge(Li)-Detektor (32 cm³ aktives Volumen, 1,75 keV FWHM Auflösung 1332 keV, Nachweiswahrscheinlichkeit bei 1332 keV 6,4 % relativ zu einem 3"x3" NaJ-Kristall). Für den Energiebereich von 2 MeV beträgt die Genauigkeit 0,1 keV. Die relativen Intensitäten wurden auf 0,01 % gerundet, wobei hier nur Linien mit einer relativen Häufigkeit >0,01 % aufgeführt sind. Die Verweilzeit der Technetiumfraktion in der zylindrischen 104 cm³-Zelle betrug 10 s.

Tab. 10: Gammaenergien, relative Intensitäten (270 keV-Linie 4808954 = 100) und Zuordnungen der γ -Linien der Technetiumfraktion eines mit 0,5 keV/Kanal bis 2 MeV aufgenommenen Spektrums

Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung	Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung
37,5	0,31	Mo-104	157,8	0,87	Tc-105
39,1	0,81	Tc-107	159,3	3,57	Tc-105
55,6	0,12	Tc-105	162,4	0,07	Tc-105
68,4	0,67	Ru-109	165,1	2,84	Ru-108
69,3	0,59	Mo-104	169,3	0,61	Tc-105, Tc-107
70,6	3,03	Tc-107	174,3	2,59	Tc-103
75,1	0,79	Tc-105	177,0	21,46	Tc-107
76,7	0,28	Mo-105	180,1	0,74	Tc-107, Tc-101
80,6	0,20	Tc-105	181,9	0,40	Tc-108
82,4	0,98	Tc-105	183,6	0,26	Ru-109, Tc-107
85,3	0,01	Mo-105, Mo-106	185,2	1,57	Tc-107
91,4	1,14	Ru-108	188,8	0,95	Tc-107
97,7	0,93		194,0	2,14	Tc-105
99,8	0,07		197,3		Ru-107
102,7	50,01	Tc-107	197,4	0,60	Tc-107, J-136m
106,3	18,18	Tc-107	199,1	0,03	
108,2	5,14	Tc-107, Tc-105	199,7	4,79	Tc-107, Rh-109
112,3	0,64	Ru-110	202,1	0,01	
113,5	0,58	Tc-105, Rh-109	203,9	0,06	Ru-107
114,5	1,35	Tc-107	206,3	1,50	Ru-109
116,2	0,63	Ru-109, Ru-107	210,4	8,81	Tc-103
127,1	0,70	Tc-101	213,7	0,22	Tc-103, Tc-105
133,1	0,23	Tc-101	216,3	0,90	Tc-107
136,1	13,40	Tc-103	220,6	0,32	Ru-107, Ru-109
138,0	3,30	Tc-107, Tc-105	222,7	0,05	
142,1	6,79	Tc-107	225,9	2,04	Tc-105, Ru-109
143,2	4,24	Tc-105	228,9	0,30	Tc-107
145,5	5,31	Tc-107	230,9	0,15	Ru-107
147,9	0,52	Tc-107, Mo-105	232,2	0,11	Tc-103
150,6	0,57	Ru-105, Ru-108	242,3	35,22	Tc-108

Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung	Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung
249,3	0,32	Ru-109, Mo-105	348,9	0,71	Tc-104, Rh-107
252,1	1,51	Tc-105, Ru-109	352,0	0,22	
253,9	0,05		353,7	7,15	Tc-104, Tc-106
257,7	0,17	Tc-107	354,5		Tc-107
258,6	0,23		358,0	11,24	Tc-105, Tc-104
262,3	0,04	Ru-105			Ru-107, Ru-109
270,1	<u>100</u>	Tc-103, Tc-106	360,3	7,32	Tc-107, Ru-107
		Tc-107	365,1	0,30	Tc-103
275,6	1,88	Ru-107	367,0	0,15	Ru-109, Rh-107
280,4	0,35	Tc-105	368,7	0,12	Tc-103
287,5	0,65	Tc-103	370,1	0,23	
291,5	9,84	Tc-107, Rh-109	373,9	2,80	Ru-107, Rh-110
		Rh-110	378,0	1,17	Tc-107, Rh-109
294,3	0,24	Tc-103	381,4	0,91	J-136m
295,6	0,37		382,6	0,69	Tc-107
296,8	0,28		386,3	2,12	Tc-107
299,2	0,30	Tc-106	388,6	2,45	Tc-103
300,9	0,24	Tc-105	392,5	0,35	Rh-107
302,8	2,12	Rh-107	394,5	0,26	Ru-107
306,8	4,14	Tc-101, Tc-105	397,4	0,47	Tc-105
		Rh-107	400,5	0,49	Mo-107
308,2	0,14		401,5	0,86	Tc-103, Tc-106
309,6	0,28	Tc-108	403,2	2,14	Tc-103
312,1	0,18	Rh-107	405,9	0,43	Tc-103, Ru-107
314,0	0,65	Tc-107	407,6	0,11	Tc-105
315,5	1,73	Tc-103, Tc-107	409,9	0,28	
319,5	0,35		411,9	0,16	
321,6	3,00	Tc-105, Rh-107	417,3	0,16	
322,5	3,29	Tc-105, Tc-107	419,2	1,39	Tc-107, Tc-105
326,9	2,04	Tc-103, Rh-109	422,9	2,20	Tc-108
333,8	0,22	Ru-107, Tc-105	426,7	0,96	Ru-109, Rh-109
		Tc-104	428,3	0,42	Tc-103, Tc-107
335,2	3,17	Tc-107	432,5	0,03	
337,4	1,48	Tc-107	433,9	2,66	Rh-108
343,4	3,96	Tc-103	439,9	0,48	Rh-110
346,3	17,29	Tc-103	441,6	0,37	Tc-105

Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung	Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung
443,9	1,81	Tc-107	546,4	0,22	Rh-110
444,6	1,14	Tc-106	547,2	0,06	Rh-110
458,7	13,09	Tc-107	548,9	0,10	
460,9	1,26	Tc-107	550,3	0,03	
462,7	1,83	Tc-105, Ru-107	551,3	0,23	
465,6	8,03	Tc-105, Tc-107	554,2	0,19	Tc-104
		Tc-108, Ru-109	556,5	0,33	Tc-107
468,8	0,36	Ru-105, Tc-102	562,8	7,52	Tc-103, Tc-107
470,8	1,50	Tc-105, Tc-107	567,7	0,14	Rh-107
		Tc-108	569,3	0,08	
475,0	3,97	Tc-102	571,0	0,16	
479,3	0,14	Tc-107	573,1	0,17	Rh-110
480,1	0,47	Tc-105	576,6	1,80	Tc-107, Tc-108
483,4	0,17	Tc-107	577,8	0,79	Tc-105, Tc-107
485,3	0,13	Ru-107	579,3	0,48	Ru-107
486,4	0,20	Tc-103	582,5	1,48	Tc-107
489,7	3,82	Tc-107, Ru-107	583,9	0,37	Tc-104, Tc-108
490,9	0,15	Tc-105, Tc-107			Rh-110
493,1	0,19		585,8	0,23	Tc-107
495,6	0,42		588,7	0,29	Rh-110
497,1	0,37	Rh-108	590,9	0,44	
498,4	2,26	Tc-103	593,5	0,44	
501,1	0,81	Tc-103	595,4	10,90	Tc-106, Tc-107
504,1	2,62	Mo-106	600,4	0,44	Tc-106
510,9	0,93	$m_e c^2$	603,0	0,50	J-137, Br-89
514,7	13,55	Tc-107	609,1	0,94	Tc-103, Tc-104
522,2	1,52	Tc-106, Tc-107			Rh-108
529,1	1,98	Tc-107	611,7	0,01	
530,5	3,31	Tc-104, Tc-107	613,6	0,15	
535,1	1,05	Tc-104, Tc-107	615,0	0,12	Rh-108
536,0	1,05	Tc-104, Tc-107	617,2	0,36	
540,0	0,40	Tc-107	618,8	1,05	Rh-108, Mo-106
540,8	0,12	Tc-105	625,0	0,05	
541,8	0,15		627,9	0,32	Tc-102
543,1	0,07		630,3	0,10	Tc-104
545,1	0,20	Tc-101	631,3	0,33	Tc-105

Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung	Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung
635,1	2,15	Tc-107	734,1	0,87	Tc-102
638,6	1,63	Tc-103, Tc-107	736,3	0,24	
639,2	0,15		737,8	0,29	Ru-107
640,1	0,58	Tc-105	739,1	0,41	Tc-105
645,1	0,22		740,9	0,13	
647,0	0,30		743,6	0,35	
648,8	0,59	Tc-104, Tc-107	746,1	0,80	Tc-107
652,1	0,88	Tc-107	751,9	0,72	Tc-107
655,9	0,14		755,2	0,23	
658,6	0,23		756,9	0,18	Tc-105
661,2	0,23		760,5	0,05	
665,1	1,07	Tc-107	761,5	0,16	
669,1	0,54	Tc-108	764,0	0,05	
671,3	1,16	Ru-109	765,0	0,08	
672,9	0,24		767,8	0,10	
675,7	0,06		768,9	0,57	Tc-103
677,5	0,76	Tc-106	773,1	0,08	
679,3	0,08		775,1	1,10	Tc-103
681,1	0,75	Tc-107	777,9	0,02	
682,8	8,24	Tc-106, Rh-107	781,0	0,30	
685,5	0,28		787,7	0,62	Tc-107
690,7	0,01	Rh-109	792,4	9,45	Tc-104, Tc-106
692,2	0,07	Rh-108	797,1	0,25	Rh-110
693,7	0,35		798,7	0,11	
697,0	0,94		801,3	0,14	
698,4	0,16	Tc-107	802,7	0,22	
703,5	0,41	Ru-107	804,6	0,29	Tc-103
704,9	0,31	Tc-107	807,7	0,46	Tc-107
707,8	5,04	Tc-108	813,7	0,14	Rh-110
712,6	0,28	Tc-108	816,9	0,21	
714,0	0,37	Tc-105	818,3	0,11	
716,0	0,17	Tc-105	820,0	0,64	Tc-103, Tc-107
720,6	7,11	Tc-106			Ru-109
723,2	1,86	Tc-107	821,5	2,00	Tc-107, Ru-107
724,6	0,19	Ru-105	824,0	0,19	Tc-105
732,4	4,40	Tc-108	825,9	0,19	Tc-105

Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung	Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung
830,9	0,16		916,7	0,09	
834,5	0,34	Tc-107	921,8	0,09	
837,2	0,09		923,3	0,10	Ru-107, Tc-107
838,7	0,05	Tc-104	924,9	0,82	Tc-107
839,3	0,31		929,0	2,93	Tc-101
841,0	0,12		931,8	0,30	Ru-107, Rh-108
843,4	0,06	Ru-107	933,2	0,19	
844,3	0,01		935,9	0,2	
847,6	1,47	Ru-107, J-134	937,6	0,68	Tc-103
851,0	2,22	Tc-103, Tc-107	940,1	0,12	
		Tc-108	947,5	0,86	Tc-106 d.e.
853,7	0,17		952,7	0,11	
854,4	0,16		953,7	0,21	
856,9	2,52	Tc-107	955,9	0,17	
861,0	0,11		957,8	0,12	
863,2	0,17	Tc-107	961,0	0,08	
865,5	0,47		962,9	0,18	
867,3	0,08		963,7	0,45	
870,5	0,22		969,5	1,30	Tc-107, Ru-105
876,0	0,15	Ru-105	973,6	1,32	Tc-107
877,1	0,06		974,3	0,16	
881,0	0,13		979,8	0,16	
882,1	0,11		981,4	1,29	Tc-107
884,3	1,56	Tc-104, J-134	990,3	0,31	
887,7	0,16		993,8	0,68	Tc-107
890,3	0,20	Ru-109	1000,0	0,15	
893,0	0,96	Tc-104	1001,4	0,10	
896,1	1,20	Tc-105, Tc-106	1003,9	0,15	Tc-105
900,4	0,26	Tc-107	1007,1	1,45	Rh-108, Tc-108
902,3	0,51	Tc-103	1008,4	0,50	Tc-105
905,1	0,46	Tc-103	1011,1	0,33	Ru-109
907,6	0,15	Ru-105	1012,8	0,16	
909,2	0,13		1016,3	1,02	
911,4	0,35	Ru-107	1022,8	0,44	
912,5	0,44		1025,5	0,41	Tc-107
912,9	0,06		1027,4	0,52	

Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung	Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung
1031,3	0,23		1174,2	0,09	
1037,5	0,06		1186,0	0,19	
1042,1	0,58	Ru-107	1194,6	0,14	
1043,1	0,21		1196,8	0,26	
1045,6	0,12		1200,3	0,54	
1047,7	0,22	Tc-105	1202,2	0,18	
1049,2	0,10		1204,5	0,04	
1059,5	0,31	Tc-105	1217,5	2,30	Tc-106 d.e.
1062,9	0,44	Tc-107	1218,7	2,25	Tc-107
1070,9	0,42		1222,1	0,67	
1076,0	0,20	Tc-107	1223,9	0,08	
1078,2	0,18	Ru-107	1231,6	0,08	
1082,4	0,15		1233,0	0,24	
1083,6	0,09		1237,9	0,18	
1086,4	0,35	Rh-110	1240,5	0,16	Tc-106
1094,2	0,49	Tc-107	1244,5	0,30	
1096,2	0,33	Rh-110	1246,4	0,23	
1103,3	0,54	Tc-102	1248,8	1,48	Tc-106
1105,5	0,45	Rh-108, Tc-102	1249,7	0,06	Tc-108
1107,2	0,20		1251,8	0,17	
1118,1	4,77	Tc-107, Tc-108	1264,0	1,25	Tc-107
1122,2	3,13	Tc-106	1265,4	0,61	Tc-107
1126,0	0,20	Tc-107	1272,1	1,37	Ru-107, Tc-108
1130,2	0,27		1279,4	0,23	
1132,3	0,18		1284,4	0,36	Tc-107
1136,6	0,01		1285,9	0,12	
1139,2	0,10		1293,6	1,96	Tc-107, Ru-107
1142,1	0,40	Ru-107			Ar-41
1144,1	0,12		1296,3	1,10	Tc-107
1147,3	0,23		1301,3	0,14	
1150,4	0,24		1305,2	0,43	Ru-109
1155,0	0,16		1308,4	0,42	Tc-108
1157,5	0,46	Tc-104	1313,1	1,20	J-136m
1161,4	0,03		1321,2	0,22	
1166,4	0,27		1356,4	0,59	
1170,0	0,18		1361,3	0,60	

Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung	Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung
1366,6	0,72	Tc-105	1539,9	0,36	Rh-108
1372,0	0,33		1549,7	1,09	Tc-107 d.e.
1378,0	1,73	Tc-107	1553,4	0,46	
1380,0	1,31	Tc-104, Tc-107	1555,4	0,33	Tc-107
1383,4	0,29		1559,6	0,33	Tc-105
1388,3	1,02	Tc-107	1560,6	0,02	
1392,2	0,69	Tc-106	1564,4	0,96	
1397,0	1,04	Tc-104, Tc-107	1570,8	0,92	Tc-105
1401,6	0,41	Tc-108	1573,2	3,50	Tc-107
1409,4	0,42	Tc-106 d.e.	1576,6	0,50	
1417,0	1,75	Tc-108	1583,5	4,27	Tc-108
1419,5	0,33		1588,8	0,55	
1422,1	0,07		1589,9	0,46	Tc-106
1425,8	0,19		1596,8	0,67	Tc-104
1427,6	0,47		1600,4	0,33	
1434,0	0,26		1602,0	0,21	
1435,2	0,75	Tc-107	1604,4	0,49	
1441,9	0,23	Rh-108	1612,3	0,67	Tc-104
1444,5	0,25	Ru-107	1615,5	3,13	Tc-106
1446,6	0,37		1623,4	0,36	
1448,9	0,46		1633,2	0,11	
1452,2	0,54	Tc-107	1633,8	0,35	
1457,4	0,23		1637,4	0,17	
1458,6	0,58	Tc-106 d.e.	1643,1	1,31	Tc-106
1460,6	2,37	K-40	1649,8	0,36	
1465,9	0,97	Tc-107	1650,9	1,30	Tc-107
1478,5	0,84	Tc-106	1654,6	0,46	Tc-107
1481,4	0,41	2502,3 d.e.	1664,7	0,33	
1491,5	0,77		1667,5	1,28	Tc-106, Tc-107
1502,3	1,75	Tc-107, Ru-109	1671,8	0,26	
1504,3	1,38	Tc-106	1676,7	0,66	Tc-104
1510,0	0,48	Tc-105	1679,2	2,27	Tc-106 d.e.
1514,7	0,21		1710,8	0,96	Tc-106
1516,8	0,36		1713,5	0,50	
1534,3	0,21		1727,8	1,29	Tc-106 s.e.
1536,4	0,21	Ru-109	1730,1	0,90	

Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung	Energie /keV	Inten- sität	Zuordnung
1736,5	0,56	Tc-104, Tc-105	1923,8	1,73	Tc-106 d.e.
1741,9	1,21	Tc-107	1929,0	0,75	
1754,5	0,60		1934,2	0,31	
1756,0	1,05		1936,0	0,23	
1760,4	1,00	Tc-108	1969,4	16,00	Tc-106
1764,9	0,09		1981,4	0,39	
1767,5	3,72	Tc-106 d.e.	1984,3	0,18	
1780,0	0,53		1991,7	0,34	2503,3 s.e.
1800,5	0,28		1993,8	1,86	
1813,2	1,46		1996,3	0,51	
1821,5	0,36		2023,6	0,46	
1840,5	1,69	Tc-106	2025,6	1,49	Tc-106 d.e.
1883,7	0,36	Tc-105, Tc-108	2043,5	0,95	
1894,5	1,77	Tc-106 d.e.	2045,4	1,83	
1909,5	0,64		2047,8	1,78	
1919,9	2,04	Tc-106 s.e.	2048,6	0,31	

3.4.4. Identifizierte Nuklide der Technetium-Fraktion

Im folgenden sind die in der Technetium-Fraktion identifizierten Nuklide mit ihren Halbwertszeiten zusammengestellt.

Tc-101	14,3	min		/41/
Tc-102	4,4	h	und 5,3 s	/41/
Tc-103	50 ± 2	s		/ 3/
Tc-104	$18 \pm 0,3$	min		/ 3/
Tc-105	$7,7 \pm 0,3$	min		/ 3/
Tc-106	36 ± 1	s		/ 3/
Tc-107	21 ± 1	s		/ 3/
Tc-108	$5 \pm 0,2$	s		/ 3/

Ru-105	4,4	h		/44/
Ru-107	$3,75 \pm 0,05$	min		/42/
Ru-108	$4,55 \pm 0,05$	min		/42/
Ru-109	$34,5 \pm 1,0$	s	und $12,9 \pm 0,5$ s	/42/
Ru-110	$12,6 \pm 0,5$	s		/42/

Rh-107	22	min		/45/
Rh-108	17 ± 1	s		/42/
Rh-109	$79,8 \pm 1,0$	s		/42/
Rh-110	$3,3 \pm 0,3$	s		/42/

J-134	52,6	min		/41/
J-136m	46	s	und 83 s	/41/

Mo-104	$59,4 \pm 0,8$	s		/43/
Mo-105	$36,7 \pm 1,0$	s		/43/
Mo-106	$8,4 \pm 0,5$	s		/43/
Mo-107	$3,5 \pm 0,5$	s		/43/

3.5. Zusammenfassung

Die Möglichkeit des schnellen Transports von Spaltprodukten mit verschiedenen Gasjetsystemen und die gute Löslichkeit der an den Clustern haftenden Nuklide ließ die Verbindung von diesen Systemen an das kontinuierlichen Trennverfahren SISAK für Extraktionschemie zu. Bereits entwickelte chemische Trennverfahren für Cer, Lanthan und Praseodym mit dem SISAK-System konnten durch Kopplung an Gasjetanordnungen am Reaktor kontinuierlich durchgeführt werden.

Damit wurden neue kernspektroskopische Daten der Nuklide des Cers, Lanthans und Praseodyms bis zum ^{148}Ce , ^{150}Pr und ^{146}La erhalten. Für die Elemente Zirkonium und Niob wurde eine Methode entwickelt, die beide Elemente in einem Verfahren nacheinander separierte. Es konnten die neutronenreichen Nuklide des Zirkoniums und Niobs bis zum ^{100}Zr und ^{104}Nb nachgewiesen werden. Weiterhin wurde ein on-line Verfahren für Technetium entwickelt, welches die selektive Abtrennung dieses Elementes aus komplexen Spaltproduktgemischen ermöglichte. An der mit Hilfe dieses Verfahrens isolierten Technetiumfraktion wurden Spektren aufgenommen und $\gamma\gamma(t)$ -Winkelkorrelationsmessungen durchgeführt, die zur Aufstellung von Zerfallsschemata des ^{106}Tc (36 s), ^{107}Tc (21 s) und ^{108}Tc (5 s) führten. Die entwickelten kontinuierlichen chemischen Abtrennungen mit dem Gasjet-SISAK-System zeigen, daß es prinzipiell möglich ist, für viele chemisch unterschiedlich reagierende Elemente on-line Trennverfahren einzusetzen. Diese Verfahren erlauben die Abtrennung kurz nach der Erzeugung der Nuklide und die anschließenden Messungen in von Störstrahlung abgeschirmter Position, sodaß jetzt auch an Nukliden mit Halbwertszeiten von wenigen Sekunden Messungen durchgeführt werden können, die aus statistischen Gründen lange Meßzeiten verlangen.

4. Gasjet-Massenseparator-Kopplung

4.1. Begründung und Zielsetzung der Kopplung

Während chemische Systeme eine Abtrennung von Nukliden nach der Kernladungszahl (Isotope) ermöglichen, werden im Massenseparator die Nuklide nach der Massenzahl aufgetrennt, man erhält also Isobare. Da man nur ionisierte Teilchen beschleunigen kann (die im Separator durch das Magnetfeld getrennt werden), ist eine wichtige physikalische Größe die Ionisierungsenergie. Sie ist abhängig von der Struktur der Elektronenhülle. Am besten lassen sich Elemente der ersten Hauptgruppe des Periodensystems (erste Ionisierungsenergie kleiner $5 \text{ eV} = 482 \text{ kJ/Mol}$) wegen des ungepaarten s-Elektrons ionisieren. Elemente der zweiten und dritten Hauptgruppe sind zur Ionisation ebenfalls geeignet.

Möglichkeiten der Ionisation sind Oberflächenionisation bei hohen Temperaturen z.B. an Tantal- oder Wolframberflächen, Elektronenstoß, elastischer Stoß beschleunigter Ionen und Wellenstrahlung. Gewünscht wird eine Ionenquelle, welche die Ionisierung vieler Elemente mit hoher Ausbeute ermöglicht.

Durch Kombination eines Gasjet-Transportsystems mit einem Massenseparator sollte es möglich sein, kurzlebige Nuklide abzutrennen, da die Trennzeit im Separator 1 ms beträgt und für den Gasjet Transportzeiten unter 1 s gemessen wurden. Zusammen mit einer Arbeitsgruppe des Physikalischen Institutes der Universität Marburg wurde ein Testseparator am Mainzer Reaktor aufgebaut und mit einem Gasjet-Transportsystem gekoppelt /46/. Im folgenden soll der Aufbau des Separators, seine Optimierung in Verbindung mit einem Kaliumchlorid/Helium-Gasjet und erste Transmissionsmessungen beschrieben werden.

4.2. Ankopplung eines Gasjets an eine Plasmaionenquelle

Bei der Auswahl des Gasjets für die Kopplung an den Massenseparator wurde von der Überlegung ausgegangen, daß das Transportgas weitgehend entfernt werden muß, damit in der Ionenquelle eine Bogenentladung aufrechterhalten werden kann. Der maximal zulässige Druck liegt zwischen 10^{-3} und 10^{-1} mbar. Dies wurde erreicht durch Verwendung von Helium, das an einer konischen Abschälform ("Skimmer") entfernt wird und mit den Ionenquellenmaterialien Tantal und Bor nicht chemisch reagiert. Die Cluster durften wegen der hohen Temperatur in der Ionenquelle nicht aus crackbaren organischen Verbindungen bestehen, da diese die Ionenquelle durch Verstopfung der Öffnungen bei Langzeitbetrieb außer Betrieb setzen könnten. Diese Forderungen erfüllte der Kaliumchlorid/Helium-Gasjet.

Die nach den im ersten Kapitel beschriebenen Bauprinzipien konstruierte Abbremskammer wurde für 5 bar Heliumdruck ausgelegt. Die Form des Abbremsraumes war eine Halbkugel von 25 mm Radius. Längs dieser Strecke konnten bei minimaler Bedeckung des Targets mit Aluminiumfolie alle Spaltprodukte thermalisiert werden. Das Target (^{235}U , 400 µg) war in der Mitte der Halbkugel in Höhe des Äquators fixiert. Die Verwendung einer 1 mm-Polyäthylenkapillare von ca. 7 m Länge gewährleistete die laminare Strömung. Nachdem sich herausgestellt hatte, daß die Pumpleistung der Rootspumpe (s.u.) nicht ausreichte, um Helium für den ungestörten Betrieb der Ionenquelle hinreichend abzupumpen, wurde der Gasjet bei 2 bar Heliumdruck betrieben, was eine Abdeckung des Targets mit einer 3,6 µm dicken Aluminiumfolie notwendig machte, um den größten Teil der leichten Spaltprodukte innerhalb des halbkugelförmigen Abbremsvolumens zu thermalisieren. Der am Ausgang der Rootspumpe gemessene Gasdurchsatz betrug 1,73 l Helium pro Minute.

Für die Ionisierung der mit dem Kaliumchlorid/Helium-Gasjet angelieferten Spaltprodukte bot sich der Typ der Plasmaionenquelle an, die noch bei relativ hohem Druck von 10^{-3} bis 10^{-1} mbar auf der Basis einer Bogenentladung arbeitet. Zwar sind die Bogenentladungsquellen technologisch schwierig zu beherrschen, da hohe Temperaturen und Isolation von Hochspannungen und Spannungsversorgungen notwendig sind, doch haben sie den Vorteil, hohe Ionisationsströme im Mikro-

ampèrebereich durch den Niedervoltbogen (50 bis 100 V; 0,5 bis 1,5 A) zu liefern, eine enge Energieverteilung der Ionen zu erzeugen und eine kurze "hold up"-Zeit (Zeit für die Ionisierung und Austritt der Ionen aus der Quelle) zu besitzen.

Ein zweiter, geeignet erscheinender Ionenquellentyp beruht auf der rein thermischen Ionisation (Reiko-Quelle), hat aber den Nachteil, daß z.B. an einer Wolfram- oder Tantaloberfläche nur Elemente kleiner 7 eV Ionisierungsenergie ionisiert werden (Langmuir-Effekt), weil die Ionisierungsarbeit des Elements kleiner als die Elektronenaustrittsarbeit des Metalls sein muß. Die erforderlichen Temperaturen für den Betrieb von thermischen Ionenquellen sind nur erzielbar bei Metallen wie Wolfram, Tantal, Hafnium, Rhenium oder Platin. Da die Bogenentladungsquelle für einen breiten Anwendungsbereich geeignet erscheint, wurde eine solche Quelle verwendet. Die von Mazumdar entwickelte Plasmaionenquelle /27/ ist in Abb. 26 im Detail gezeigt und in Abb. 27 in der Anordnung am Massenseparator.

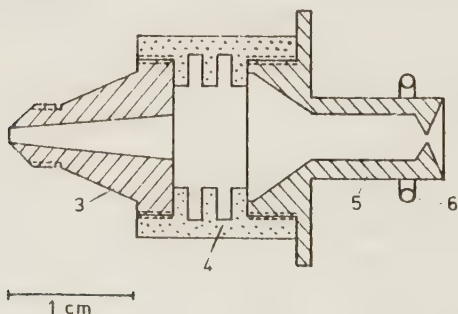


Abb. 26: Schnitt durch die Plasmaionenquelle /47/

Der aus Tantal angefertigte Skimmer (2), der gleichzeitig einen Teil der Anode der Ionenquelle darstellt (3), dient der Abschälung und Ableitung des Transportgases Helium. Durch die Stahlkapillare (1) treten als Kernstrahl die Cluster mit dem Transportgas in den Raum vor der Skimmer-Anoden-Anordnung ein, in dem ein Vakuum von 1 mbar durch die Pumpen aufrechterhalten wird. Der Kernstrahl passiert die 1 mm Durchmesser umfassende Öffnung der Anode. Von

der Anode ist, durch einen Bornitridisolator (4) getrennt, die Kathode aus Tantal (5) zu sehen, die auf 20 bis 30 kV Hochspannung liegt. Aus ihrer 0,6 mm-Öffnung werden die Ionen mit der auf Erdpotential liegenden Elektrode (7) ("Ziehblende") extrahiert und beschleunigt. Die Kathode wird durch Elektronenbombardement aus dem einfach gewundenen Tantaldraht (6) geheizt.

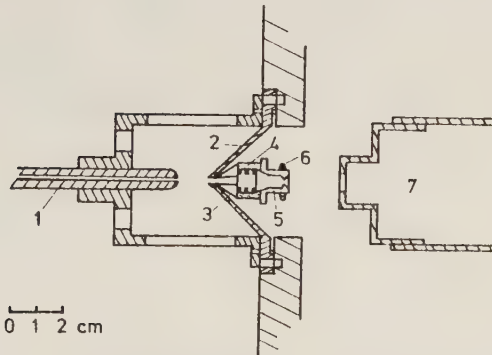


Abb. 27: Skimmer-Ionenquelle-Anordnung am Massenseparator /47/

4.3. Aufbau des Massenseparators am Mainzer Reaktor

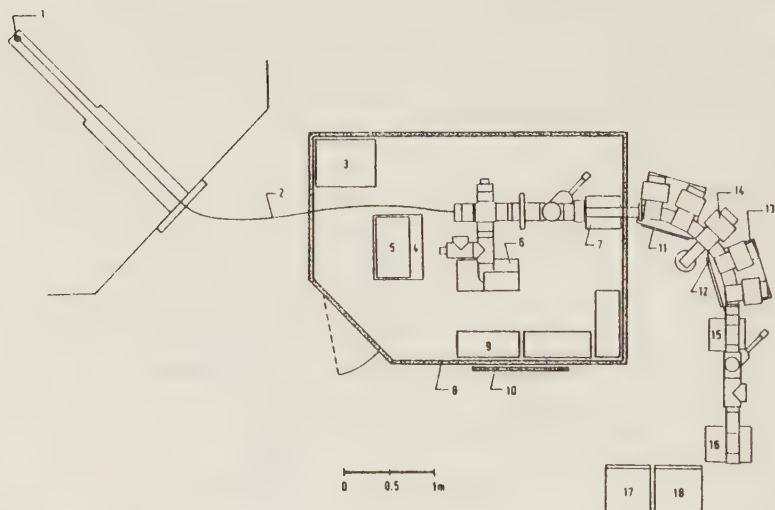


Abb. 28: Anordnung Gasjet-Massenseparator am Mainzer Reaktor

Der linke Teil der Abb. 28 zeigt den Anriß des Reaktors mit der Führung des Gasjets von der Targetkammer (1) durch die Kapillare (2) zum Massenseparator. Wegen des hohen Geräuschpegels der Pumpen und zum Berührungsschutz vor den auf Hochspannung liegenden Teilen des Separators wurden diese in einer Kabine (8) mit Zugang durch eine Tür und Belüftung mit einem starken Gebläse untergebracht. Bei den Pumpen zum Abpumpen des Transportgases Helium des Gasjets handelt es sich um eine Rootspumpe ($2000 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$) mit Vorvakuumpumpe ($160 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$) (6). Die Energieversorgung der Rootspumpe erfolgt über einen Hochspannungstransformator (380/380 V; 15 kVA; 50 s^{-1}) (4); die Ionenquelle wird durch drei Hochspannungstransformatoren (220/220 V; 2,5 kVA; 500 s^{-1}) (9) für Kathodenheizung, Bogenspannung und Elektronenheizung versorgt.

Links vor der Vorvakuumpumpe (7) ist ein großes VAT-Ventil angeflanscht, unter dem eine Öldiffusionspumpe für das Hochvakuum steht.

An der Außenwand der Kabine befinden sich Anzeigeinstrumente (10) zur Überwachung der Betriebsdaten der Ionenquelle. Das Laufrohr verläßt die Kabine durch eine abgedichtete Öffnung der Kabinenwand und schließt an den Separatormagneten (90°-Sektor) (14) an, der über die Schalttafel (12) bedient wird. Das Vakuum für die Laufrohre und den Separatormagnet wird von zwei Öldiffusionspumpen aufrechterhalten, die an eine Vorvakuumpumpe (15) angeschlossen sind. An weiteren schalt- und meßtechnischen Einrichtungen außerhalb der Kabine sind die Außensteuerung der Rootspumpe (11), die Kühlwasserversorgung für die Magnete und Diffusionspumpen mit Abschaltschutz gegen Wasserausfall (13), Einschübe für die Ionenquelle-Versorgung, die Magnetstrom-Versorgung (Heinzinger: 60 V, 100 A) (16) und die Einschübe für die Strahlbeobachtung zu sehen.

4.4. Justierung und Optimierung der Anlage

Die aus der Extraktionsöffnung der Ionenquelle austretenden Ionen werden durch die Ziehblende beschleunigt. Von Bedeutung ist dabei die Form des Plasmas an der Austrittsöffnung der Ionenquelle und im Zusammenhang damit der Abstand der Ziehblende von der Ionenquelle. Am günstigsten ist eine Ionenquelle, deren Austrittsöffnung schneidenförmig und rund ist. Generell strebt man den sogenannten Niedervolt-Bogen an, der hohe Ionenströme (μA -Bereich) erzielen läßt (proportional zur Ionenquellenextraktionsöffnung). Diesen Niedervolt-Bogen zu erreichen, erfordert einen differenzierten Abgleich von Kathodenheizung, Gasdruck in der Ionenquelle und Bogenspannung. Für den Niedervolt-Bogen wurde proportionaler Anstieg des Ionenstroms mit steigendem Bogenstrom (Bereich 0,5 bis 1,5 A) festgestellt. Ist der Zustand des Niedervolt-Bogens erreicht, muß versucht werden, durch Variation der Kathoden- und Elektronenheizung für das Plasma an der Austrittsöffnung eine möglichst plane Form zu erreichen, was aus technischen Gründen oft schwer realisierbar ist. Das Plasma darf nicht extrem konkav oder konvex in Strahlrichtung geformt sein, da einmal bei einer "endlichen" Öffnung der Ziehblende und konvexem Plasma Ionen außerhalb der Ziehblende verloren gehen, zum anderen bei konkavem Plasma die Ionen in einer Art Brennpunkt vor oder in der zylinderförmigen Ziehblende konzentriert werden. Dieser letzte Effekt macht die Herstellung eines annähernd parallelen Ionenstrahls wegen der Raumladungseffekte bei höherer Ionendichte so gut wie unmöglich. Da keine unmittelbare Möglichkeit besteht, die Form des Plasmas an der Ionenquellenaustrittsöffnung zu analysieren, bleiben nur Ionenstrommessungen mit Blenden oder Faraday-Tassen und die Strahlprofilbestimmung mit Strahlanalysatoren (z.B. dünnen, über den geometrischen Querschnitt des Strahlrohres oszillierenden Drähten zur ortsabhängigen Strommessung), als indirekte Untersuchungsmethode; schließlich noch die Messung des Stromes, der durch die auf die Ziehblende auftretenden Ionen verursacht wird. Diese Messungen wurden durchgeführt mit Variationen der Ionenquelle-Austrittsöffnung (0,6 und 0,8 mm), der Heizströme, der Bogenspannung, des Ziehblendenpotentials gegen die Kathode der Ionenquelle, des Abstandes Kapillarende zum Skimmer und des Zeit-Volumen-Durchsatzes des Gastransportsystems (bzw. des Bremskammer-Drückes).

Die Massenauflösung A , die definiert ist als Produkt aus dem Massenwert einer registrierten Masse M und dem Abstand Δx zu einer zweiten registrierten Masse dividiert durch das Produkt aus der Halbwertsbreite Δy des Massenpeaks und der Massendifferenz Δm zur zweiten registrierten Masse wurde für den aufgebauten Massenseparator bei Untersuchung der Xenonisotope zu 560 bestimmt /50/.

$$A = \frac{M \cdot \Delta x}{\Delta y \cdot \Delta m} = \frac{130 \cdot 15}{3,5 \cdot 1} = 560$$

4.4.1. Ionenoptische Abbildung und Veränderung der beeinflussenden Parameter

Beim Vergleich des lichtoptischen Strahlenverlaufs in einer bikonvexen Zylinderlinse zum reellen Bild zur "Optik" des Ionenstrahls im Magnetfeld kommen dieselben Abbildungsfehler aus qualitativ ähnlichen Ursachen hervor, doch sind die quantitativen Effekte wesentlich ausgeprägter.

Die lichtoptische Linse ist mit wesentlich höherer Präzision erhältlich als die Herstellung eines idealen Magnetfeldes. Der Übergang des Lichtes erfolgt zwischen den brechenden Medien abrupt, beim Magnetfeld ist das Streufeld außerhalb des Magneten nur schwer zu beherrschen (Feldgrenze). Es kommt daher zu einer viel stärkeren Ausprägung der "sphärischen Aberration" bei der Magnetlinse, d.h. die Verschmierung der Randstrahlen tritt stärker hervor als im lichtoptischen Fall. Ein weiteres Phänomen der lichtoptischen Brechung ist die chromatische Aberration (weißes Licht), die im ionenoptischen Fall von der Energiedispersion der Ionen herrührt, welche unter Umständen doch beträchtlich sein kann (Abhängigkeit von der Plasmatemperatur und der Potentialform zwischen Ziehblende und Ionenquelle). Für Ionen gleichen Impulses gilt jeweils ein spezifischer Brennpunkt. Auch die Phänomene Astigmatismus und Verzeichnung in der Lichtoptik treten bei der Magnetlinse auf.

Im Endeffekt kann man sich die Abbildung eines mit Ionen bestrahlten Loches wegen der Energiedispersion und schwer zu erreichender Parallelität der Ionenbahnen zur "optischen Achse" als Ellipsoid oder an den Hauptachsen eingeschnürtes Ellipsoid vorstellen.

Neben der Forderung, ein ausgedehntes homogenes Magnetfeld zu erzeugen, bedarf es auch einer Einrichtung zur Fokussierung. Es besteht einmal die Möglichkeit der Fokussierung mit zusätzlichen Feldern (Quadrupole u.ä.), aber auch die Ausnutzung ionenoptischer Eigenarten wie z.B. der starke Einfluß der Feldgrenzen bezüglich der "optischen Achse".

Der 90°-Sektor-Separatoromagnet ist mit den Laufrohren über flexible Federkörper verbunden und wurde auf einer Vierpunkt-Kugel-Auflage auf Betonschwellen so gelagert, daß eine millimetergenaue Einrichtung des Magneten in allen drei Raumrichtungen x, y und z möglich war.

Diese Einrichtung der mechanischen Justierung erlaubte eine schnelle Durchfädelung des Ionenstrahls durch das Magnetfeld.

Durch Kontrolle des Strahlprofils und Messung des separierten Heliumstromes konnte durch Verschieben des Magneten in der Winkelhalbierenden zwischen x- und y-Richtung bereits eine grobe Justierung erzielt werden. Die optimale Strahlqualität (enge symmetrische Stromverteilung) konnte mit der Möglichkeit der Feinfokussierung durch Kontrolle des Strahlprofils (Parabeln als Schnitte durch das Ellipsoid des Fokusraums) unter der Veränderung der Feldgrenze an Eintritts- und Austrittsebene des Magnetfeldes durch drehbare Polschuhpaare erhalten werden. Diese Polschuhpaare verändern den Einschuß- bzw. Austrittswinkel der Ionen zum Magneten, wobei das Polschuhpaar an der Eintrittsöffnung eine Fokussierung in der xy-Ebene und das Polschuhpaar an der Austrittsöffnung (also nach $s = R\pi/2$, s. Anhang), eine Fokussierung in der z-Richtung ermöglichte /51/. Die Verschiebung des Magneten in Richtung der Winkelhalbierenden des Sektors führt zu einer Abstandsänderung des Brennpunktes vom Polrand und zu einer Änderung des Einschußwinkels in den Magneten. Die Folge davon ist eine Änderung der Bildweite und -ebene. Die Feinfokussierung mit Hilfe drehbarer Polschuhblätter hat nur Einfluß auf die Einschuß- bzw. Austrittswinkel der Ionen, da die Streufelder durch die Polschuhe in ihrer Form nicht verändert werden. Diese qualitativen Veränderungen durch Polschuhveränderungen und Streufeldeinflüsse können auch weitgehend berechnet werden /52, 53/, doch sind Berechnungen nur richtungsweisend für die Einrichtung des Separators und der praktische Betrieb ist abhängig von Fertigungsgenauigkeiten der Bauteile und der richtigen Reaktion auf die Veränderungen des mit einem Oszilloskop dargestellten Strahlprofils.

4.4.2. Einfluß der Ionenquelle-Betriebswerte und der Ionenextraktionsbedingungen auf Strahlführung und Strahlprofil

Es wurden u.a. folgende Untersuchungen durchgeführt:

- Abhängigkeit des extrahierten Ionenstromes von der Ziehspannung bei verschiedenen Flächen der Extraktionsöffnungen der Ionenquelle
- Abhängigkeit des extrahierten Ionenstromes vom Bogenstrom bei konstanter Extraktionsöffnung und Ziehblendenspannung
- Abhängigkeit des Strahlprofils vom Abstand Extraktionsöffnung-Ziehblende bei konstanter Ziehblendenspannung und verschiedenen Bogenströmen
- Abhängigkeit des Strahlprofils von der Ziehspannung bei verschiedenen Bogenströmen und festem Abstand Ziehblende-Extraktionsöffnung (130 mm)

Die Ergebnisse der ersten Untersuchung (a) sind in Abb. 29 dargestellt. Die Konstanz der Stromdichte bei den verschiedenen Extraktionsöffnungen beweist die direkte Proportionalität des extrahierten Ionenstromes zur Fläche der Extraktionsöffnung. Neben dem erwarteten Anstieg des Extraktionsstromes, der hinter der Ziehblende gemessen wurde (Sammeleffekt), ergibt sich für jede Ziehblendenspannung gute Übereinstimmung zwischen den Quotienten von gemessenem Extraktionsstrom zur Fläche der Extraktionsöffnung. Diese betrugen für die Ziehspannung

4 kV	$83 \pm 5 \text{ } \mu\text{Amm}^{-2}$
8 kV	$115 \pm 2 \text{ } \mu\text{Amm}^{-2}$
12 kV	$145 \pm 3 \text{ } \mu\text{Amm}^{-2}$
16 kV	$166 \pm 4 \text{ } \mu\text{Amm}^{-2}$
20 kV	$188 \pm 2 \text{ } \mu\text{Amm}^{-2}$
24 kV	$194 \pm 1 \text{ } \mu\text{Amm}^{-2}$

Bis 20 kV ist ein näherungsweise linearer Anstieg des extrahierten Ionenstromes zu erkennen (Abb. 29 b).

Die Ergebnisse der zweiten Untersuchung (b) sind in Abb. 30 dargestellt. Man erkennt die direkte Proportionalität des Gesamtextrak-

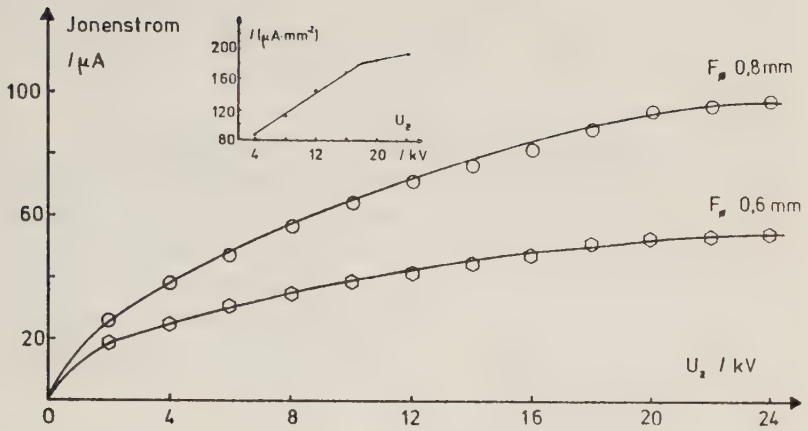


Abb. 29: a) Abhängigkeit des extrahierten Ionenstromes von der Ziehspannung U_z
 b) Abhängigkeit des Quotienten Ionenstrom/Extraktionsöffnungsfläche von der Ziehspannung

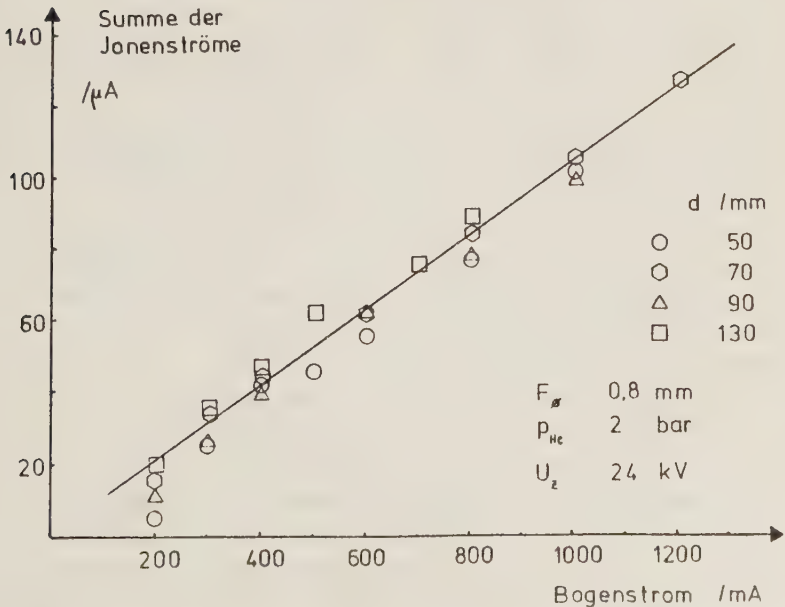


Abb. 30: Abhängigkeit des Gesamtextraktionsstromes vom Plasmabogenstrom; d = Entfernung Ziehblende-Ionenquelle

tionsstromes vom Plasmabogenstrom; der Quotient beträgt $1,06 \cdot 10^{-4}$ bei 24 kV Ziehspannung, 3 bar Kammerdruck und einer Extraktionsöffnung von 0,8 mm Durchmesser. Dies ist unabhängig von den Ziehblendenabständen d im Bereich von 50 mm bis 130 mm.

Die nächste Untersuchung (c) ergab die in Abb. 31 dargestellten, mit einem Strahltester hinter der Ziehblende nachgewiesenen Ionenstrahlprofile. Die Profile sind untereinander vergleichbar. Die veränderten Parameter sind der Bogenstrom (0,6-0,8-1,0-1,2 A), was unterschiedliche Plasmagrenzflächenwölbungen an der Ionenaustrittsöffnung bewirkt; vergleichbar sind auch die Profile bei konstantem Extraktionsöffnung-Ziehblenden-Abstand von 60 mm bei verschiedenen Extraktionsspannungen (A und B), sowie die Profile bei konstantem Ziehblendenpotential von 24 kV, aber verschiedenen Extraktionsöffnung-Ziehblende-Abständen (B, C und D).

Betrachtet man die Profile bei Abb. 31 D, so erkennt man mit steigendem Bogenstrom eine Zunahme der Peakfläche, wobei die Symmetrie der Peakform nicht beim höchsten Bogenstrom, sondern bei 1,0 A am besten ist. Es ist einmal möglich, daß die Ionenstromdichte bei der Extraktion aus dem 1,2 A-Bogen so hoch war, daß die Parallelität der Teilchenbahnen wegen Raumladungseffekten gestört wurde, d.h. eine gute Fokussierung verhinderte. Zum anderen kann die gestörte Peaksymmetrie beim stärksten Peak von Inhomogenitäten des Plasmas am Rande der kreisförmigen Austrittsöffnung entstanden sein, d.h. die durch Herstellungsungenauigkeiten, Sputtering oder Verdampfung selten genau kreisförmige Austrittsöffnung hat bei sehr flacher konvexer Plasmagrenzfläche einen relativ höheren Einfluß auf die Divergenz des Strahls als bei mehr in Strahlrichtung konvexer Plasmagrenzfläche. Jedenfalls scheint die Fokussierung dieser eingesetzten Ionenquelle bei einem Bogenstrom von 1 A, 24 kV Ionenextraktionsspannung und 130 Millimeter Ziehblendenabstand aufgrund der hohen Symmetrie und hohem Ionenstrom (Integral über die Kurve) optimal gewesen zu sein. Der Einfluß der verschiedenen Ziehblendenabstände (B bis D) zeigt, daß bei einer Verkürzung des Abstandes zur Ionenquelle der Ionenstrom geringer wird und die Peakform stark vom idealen Bild abweichen kann. Diese Effekte stehen in Übereinstimmung mit Beobachtungen, die an anderer Stelle gemacht wurden /54/. Sie können herrühren vom Verlust an Ionen, die auf die Ziehblende oder an ihr vorbeigehen.

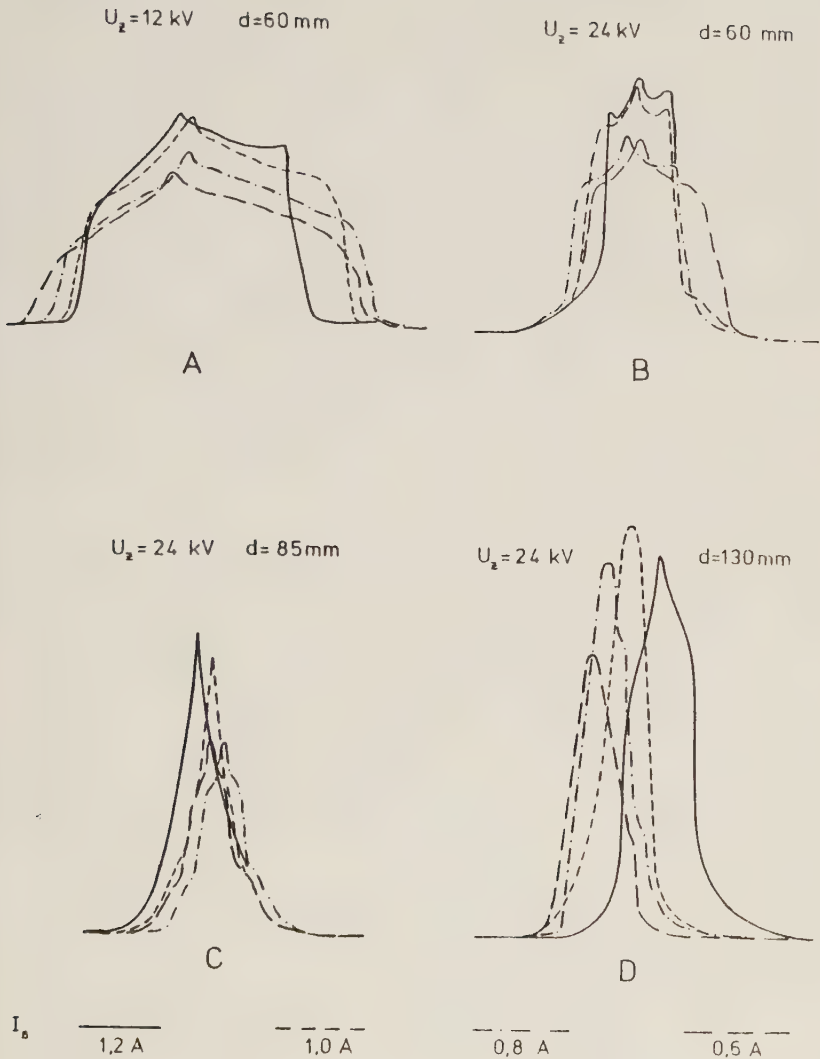


Abb. 31: Strahlprofile in Abhängigkeit vom Abstand Extraktions-
 öffnung-Ziehblende bei konstanter Ziehblendenspannung
 U_z und verschiedenen Bogenströmen I_B

fliegen, und ungünstigen Fokussierungsbedingungen (hohe Strahldivergenz im Fokussierungsbereich). Extrem sind diese Auswirkungen in Abb. 31 A zu sehen als Unsymmetrie und Peakverschmierung.

Vergleicht man Abb. 31 A mit B - konstanter Ziehblendenabstand, unterschiedliche Beschleunigungsspannung -, so deutet dies darauf hin, daß bei dieser niedrigen Ziehspannung die Ionen sehr schwach fokussiert sind, sodaß zwar die meisten im Fokussierungsbereich verbleiben (Intensität bei A ist größer als bei B), aber ein mehr divergenter Strahl (Breite) resultiert, dessen räumliche Ausdehnung nicht für eine gute Massentrennung ausreicht (schlechte Auflösung). Die Fokussierung beim doppelten Ziehblendenpotential ist zwar bedeutend besser, doch auch noch nicht ausreichend für gute Massentrennungen. Wie bei der Diskussion von Abb. 31 D wiederholen sich die Beobachtungen für B und C, daß bei Variation des Bogenstromes die Fokussierung bei einem mittleren Bogenstrom (1 A) für diese Ionenquellenausführung die beste ist.

Will man sich aus diesen Vergleichen ein Bild von der Plasmagrenzfläche machen, kann man feststellen, daß stärkste Divergenz bei niedrigem Bogenstrom erscheint, was für ein stark konvexes Plasma spricht; der höchste Ionenstrom und die beste Fokussierung ergibt sich beim mittleren Bogenstrom (1 A) und dies kann auf eine schwach konvexe Plasmaflächenkrümmung zurückgeführt werden.

Ähnliche Strahlqualitäten beschreiben Chavet und Bernas /54, 55/, doch beziehen sie auch einen konkaven Meniskustyp ein, dessen Auswirkungen auf die Strahlqualität in dieser Arbeit nicht beobachtet werden konnten.

Die letzte Untersuchung (d) zeigt in Abb. 32 die Strahlprofile bei verschiedenen Bogenströmen und Ziehspannungen, doch konstantem Ziehblendenabstand von 130 mm.

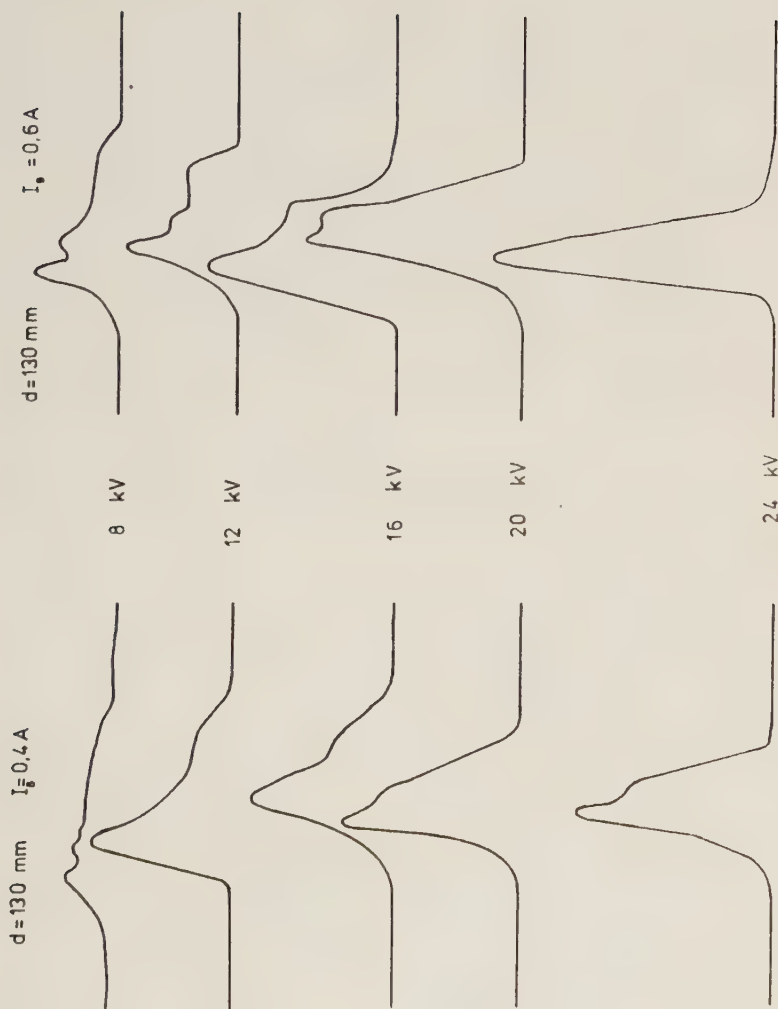


Abb. 32: Strahlprofile bei konstantem Ziehblenden-Extraktionsöffnungsabstand (130 mm) in Abhängigkeit vom Bogenstrom (0,4 und 0,6 A) bei verschiedenen Ziehspannungen

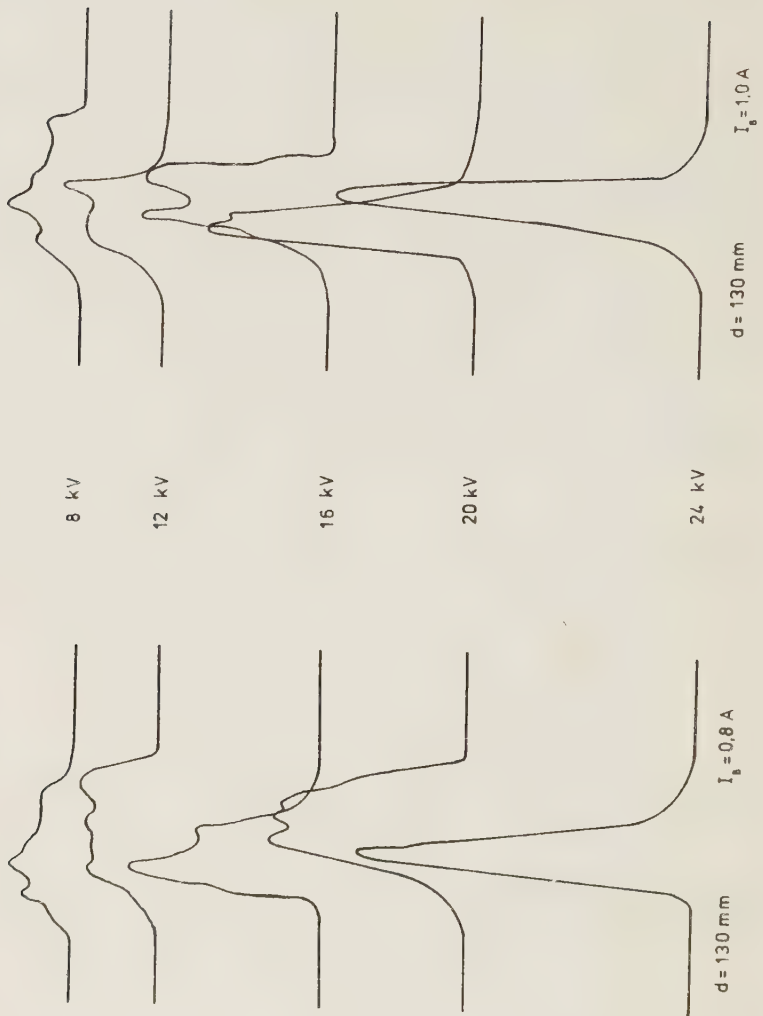


Abb. 32: Strahlprofile bei konstantem Zieblenden-Extraktionsöffnungsabstand (130 mm) in Abhängigkeit vom Bogenstrom (0,8 und 1,0 A) und verschiedenen Ziehspannungen

Sehr deutlich ist zu bemerken, daß mit zunehmender Ziehspannung die Strahlqualität immer besser wird (Symmetrie, kleinere Halbwertsbreite), wobei der Ionenstrom mit steigendem Bogenstrom zunimmt. Zusätzlich sieht man eine nicht gleichmäßige Verbreiterung bei den niedrigen Ziehspannungen, was den Verdacht verstärkt, daß Unvollkommenheiten der Ionenquellen-Extraktionsöffnung (z.B. Elliptizität der Öffnung, unterschiedliche Dicke des Materials in der Tiefe der Austrittsöffnung) am "unsymmetrischen" Plasmaaustritt beteiligt sein können. Dies schließt jedoch andere Ursachen nicht aus, wie Nichtübereinstimmung der Ionenquellenachse mit der Ziehblendenachse, ungünstiger Strahleinschuß in den Magneten u.a.

Die optimalen Betriebsdaten der Gesamtanordnung sind im folgenden zusammengefasst:

Kaliumchlorid/Helium-Gasjet-System:

Bremskammerdruck	2 bar
Target	400 µg ^{235}U , mit 3,6 µm dicker Aluminiumfolie bedeckt
Kapillare	7 m lang, 1 mm Innendurchmesser, Polyäthylen; im Anschluß 1 m Stahlkapillare
Gasdurchsatz	1,73 l/min

Kopplung Gasjet-Ionenquelle:

Abstand Kapillare-Skimmer	8 mm
Skimmerwinkel und -öffnung	45°, 1 mm Durchmesser

Ionenquellen-Betriebsdaten:

Kathodenheizung	28 A, 5 V
Elektronenheizung	0,3 A, 200 - 250 V
Bogenzündspannung	1000 V
Austrittsöffnung der Kathode	0,6 mm Durchmesser
Ionenbeschleunigungsspannung	20 - 24 kV

Extraktionssystem:

Abstand Extraktionsöffnung-Ziehblende	130 mm
Ziehblendenöffnung	10 mm Durchmesser

Strommessungen:

Ionenstrom hinter der Ziehblende	10 - 20 μA
Heliumionenstrom (massengetrennt)	8 - 16 μA
Kaliumionenstrom	1 μA

4.5. Massenspektrum der Kopplung Kaliumchlorid/Helium-Gasjet mit der Plasmaionenquelle

Ein typisches Massenspektrum bei Ankopplung eines Kaliumchlorid/Helium-Gasjets an die Plasmaionenquelle zeigt Abb. 33. Der stärkste Peak rührt verständlicherweise vom Transportgas Helium her. Die Peaks für das Aerosolmaterial Kaliumchlorid, seine Dissoziationsprodukte und die Kombinationen der Isotope im Kaliumchlorid sind nachgewiesen. Die restlichen Peaks haben ihren Ursprung in den Verunreinigungen des p.a.-Salzes (Li, F), Pumpenöl, Restmengen Luft im Systems (N, O, CO₂, H₂O) und Ionenquellenmaterialien (BN, Ta) sowie seinen Reaktionsprodukten mit Sauerstoff und Chlor. In Tab. 12 sind die gefundenen Spezies aufgeführt.

Masse	Zuordnung	Masse	Zuordnung	Masse	Zuordnung
4	He ⁺	25	BN ⁺	74	³⁹ K ³⁵ Cl ⁺
7	N ⁺ , Li ⁺	28	N ₂ ⁺ , CO ⁺	76	³⁹ K ³⁷ Cl ⁺
11	B ⁺	32	O ₂ ⁺	78	⁴¹ K ³⁵ Cl ⁺
12	C ⁺	35	³⁵ Cl ⁺	140	⁴¹ K ³⁷ Cl ⁺
14	N ⁺	36	H ³⁵ Cl ⁺	181	Cs ⁺
16	O ⁺	37	³⁷ Cl ⁺	197	Ta ⁺
18	H ₂ O ⁺	39	³⁹ K ⁺	213	TaO ⁺
19	F ⁺	41	⁴¹ K ⁺	216	TaO ₂ ⁺
					TaCl ⁺

Tab. 12: Zusammenstellung der gefundenen Massen aus der Ankopplung Kaliumchlorid/Helium-Gasjet mit der Plasmaionenquelle

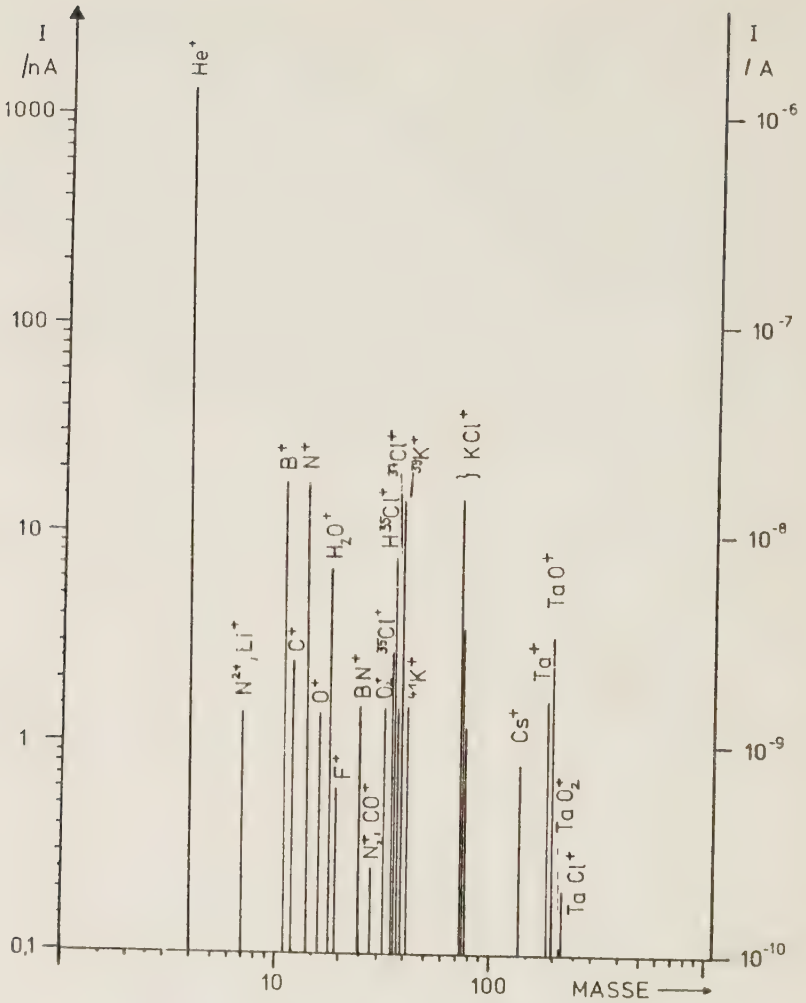


Abb. 33: Massenspektrum der Kopplung Kaliumchlorid/Helium-Gasjet mit der Plasmaionenquelle

4.6. Transmissionsmessungen für das Separatorsystem

4.6.1. Heliumstrom

Die Transmissionsmessungen mit Helium wurden während der Justierung der Gesamtanordnung zwischen der Ionenquelle und hinter dem Separator vorgenommen. Sie wurden durch Messung des Strahlstromes auf einer senkrecht zur geometrischen Achse des Laufrohres verschiebbaren Faradaytasse ausgeführt. Der Sekundärelektronenfaktor wurde berücksichtigt; er beträgt bei einer Ionenenergie von 20 keV ungefähr 2 und wurde durch Anlegen einer Gegenspannung bestimmt, die den Sekundärelektroneneffekt beim Auftreffen von beschleunigten Ionen auf eine Metalloberfläche kompensiert.

Die so gemessene Transmission durch den Separatormagneten betrug ungefähr 80 %. Die Anteile anderer als Heliumionen bei der Strommessung hinter der Ziehblende können vernachlässigt werden (s. Abb. 33). Der Heliumstrom liegt unabhängig von den Ionenquellen-Betriebsdaten in der Größenordnung von einigen Mikroampère ($\leq 20 \mu\text{A}$).

4.6.2. Spaltprodukte

Die Messung der Transmission von Spaltprodukten kann nicht mehr durch eine Strahlstrommessung erfolgen, da die Erzeugungsrate von Spaltprodukten unter den gegebenen Bedingungen zu gering ist. Die Bestimmung erfolgte deshalb γ -spektroskopisch. Dabei wurde die Ausbeute jedes Teilschritts der Erzeugung bzw. Trennung der Nuklide gemessen. Der Bezugswert für die Ausbeutemessungen war die Intensität der direkt über dem Target (2π -Geometrie) durch vollständige Absorption in einer Polyäthylenfolie aufgefangenen Spaltprodukt-nuklide. Unter der Voraussetzung, daß die aus dem Target austretenden Spaltprodukte vollständig innerhalb der freien Weges in der Abbremskammer thermalisiert werden, wurden die Ausbeuten der einzelnen Trennschritte bestimmt:

bezogen auf das Nuklid ^{141}Ba betrugen

die Gasjet-Ausbeute (Target/Kapillarende)	60,8	%
die Ionenquellen-Ausbeute	1,13	%
die Separator-Ausbeute (Transmission des Magneten)	50	%

Die niedrige Transmission des Magneten ist erklärlich durch eine Dejustierung; spätere Nachmessungen ergaben wieder 80 %.

Die Transmission der Gesamtanordnung ergibt sich aus dem Produkt der gemessenen Werte ($0,608 \cdot 0,0113 \cdot 0,5 \cdot 100$) zu 0,35 %.

Das kurzlebigste, bei Impulsbetrieb des Reaktors erzeugte und massengetrennt nachgewiesene Nuklid war das ^{143}Cs mit einer Halbwertszeit von 1,6 s /50/. Die Messungen anderer Nuklide zur Bestimmung der Gesamttransmission und Laufzeit sind bei Brügger /50/ beschrieben.

Der Vergleich mit anderen Gasjet-Ionenquellen-Separator-Kombinationen /56/ ergibt, daß das am Mainzer Reaktor aufgebaute System eine Transmission besitzt, die mit 10^{-2} bis 10^{-1} % /50/ die obere Grenze der anderen Systeme erreicht. Auch die überwiegend durch den Transport des Gasjet-Systems festgelegte Trennzeit für die Nuklide liegt mit ca. 1 s in einem Halbwertszeitbereich, der bisher für die kontinuierliche Untersuchung der Nuklide nur schwer zugänglich war.

4.7. Zusammenfassung

Zur Untersuchung von massengetrennten Nukliden wurde ein Separator am Mainzer Reaktor aufgestellt und an einen Kaliumchlorid/Helium-Gasjet gekoppelt.

Nach der mechanischen Justierung des Separators durch Messung der Ionenströme und Prüfung der Strahlprofile an den Verbindungsstellen der Einzelteile des Systems (Ionenquelle, Ziehblende, Laufrohr, Magnet und Auffänger) wurden die Ionenquelle-Betriebsdaten optimiert und ihr Einfluß auf die Strahlführung und das Strahlprofil untersucht. Die Messung des Massenspektrums der Kopplung Kaliumchlorid/Helium-Gasjet mit der Plasmaionenquelle ergab am Auffänger Heliumströme im Mikroampèrebereich und Kaliumströme um 100 nA. Die Transmissionsmessung mit Spaltprodukten führte für ^{141}Ba (Messung über dem ebenen Target und massengetrennt hinter dem Magneten) zu einem Wert von 0,35 %. Dieser Wert liegt an der oberen Grenze vergleichbarer Separatoranordnungen. Das kurzlebigste Nuklid, das massengetrennt beobachtet werden konnte, war das ^{143}Cs mit 1,6 s Halbwertszeit.

bezüglich der Kreisbahn des Normalteilchens eintreffen wie das Normalteilchen (Abb. 34). Wenn die Teilchen die 90° -Ebene schneiden (OP), sind die Bahntangenten parallel, was für später festgehalten werden sollte.

Beim Übergang von einem 180° -Sektorfeld zu einem Sektorfeld mit dem Winkel $\phi_1 < 90^\circ$ (z.B. POQ, Feldgrenze ist Sektorgrenze) bleiben die Teilchenbahnen im Magnetfeld unter der Voraussetzung parallelen Eintritts in das Magnetfeld erhalten (Π), doch werden die Bahnen nach Verlassen des Feldes Geraden sein (Tangenten vom Austrittspunkt der Teilchen ab der Feldgrenze). Diese Geraden schneiden die Senkrechte zur Eintrittsebene (ON) nicht mehr bei N sondern bei N'. N' ist also der gemeinsame Brennpunkt aller Bahnen des paraxialen Parallelbündels Π . Wird an das Sektorfeld mit dem Zentriwinkel ϕ_1 ein zweites Sektorfeld mit dem Zentriwinkel ϕ_2 angefügt (Abb. 35 a),

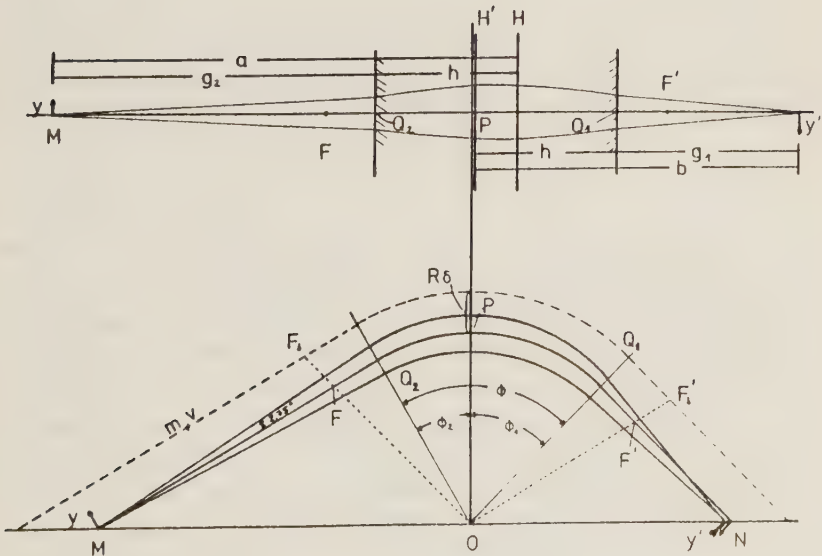


Abb. 35: Trägeroptische Abbildung durch ein Sektorfeld /49/

gelten dieselben Überlegungen analog. Die Teilchenbahnen wurden in dieser Abbildung entsprechend den geometrischen Prinzipien für Abb. 34 konstruiert. Man erkennt leicht, daß es zu einer erheblichen "Verschmierung" des Bildes y' durch die Abbildungseigenschaften nicht senkrecht in das Magnetfeld eintretender Teilchen kommt. Für die gestreckte Darstellung der Abb. 35 b wurden mit Hilfe entsprechender Gleichungen $[(g = \cotg \phi, f = R/\sin \phi, h = g \cdot f = -R \cdot \tan(\phi/2)]$ die "optischen" Parameter g_1, g_2, f_1, f_2 und h bestimmt, womit auch die Hauptebenen, der Objekt- und Bildabstand a und b festgelegt waren. Man liest aus der Abb. 35 b für das Sektorfeld $\phi = \phi_1 + \phi_2$ einen Objekt- und Bildabstand $a = g_2 + h$ und $b = g_1 + h$ ab. Abgesehen von der um den Winkel ϕ gekrümmten "optischen" Achse kann man für die Abbildung des Gegenstandes y in das Bild y' die Beziehung für die Zylinderlinse anwenden

$$\frac{1}{a} + \frac{1}{b} = \frac{1}{g_2 + h} + \frac{1}{g_1 + h} = \frac{1}{f}$$

Unter Einbezug unterschiedlicher Masse- und Geschwindigkeitswerte der Teilchen (m, v) gilt $mv = m_0 v_0 (1 + \delta)^*$ und der entsprechende Radius der Bahn beträgt

$$R_\delta = R(1 + \delta)$$

Für jedes (m, v)-Paar gilt dann eine eigene optische Achse, die zur Bahn des Normalträgers den Abstand R_δ besitzt (Abb. 35a). Die geometrisch-optische Darstellung zeigt also verschiedene Bilder y' , die von unterschiedlichen Wertepaaren (m, v) der Teilchen herrühren (Ergebnis ist ein Impulsspektrum). Wenn jedoch wie im vorliegenden Fall wegen des konstanten Extraktionspotentials U alle Teilchen gleiche kinetische Energie besitzen $[(1/2)mv^2 = qU = \text{const.}]$, wird aus dem Impulsspektrum ein Massenspektrum.

*

$$m = m_0(1 + \gamma)$$

$$v = v_0(1 + \beta)$$

$$mv = m_0 v_0 (1 + \gamma)(1 + \beta) = m_0 v_0 (1 + \gamma + \beta + \gamma\beta) = m_0 v_0 (1 + \delta)$$

6. Literaturnachweis

- /1/ N. Trautmann und G. Herrmann
J. Radioanal. Chem. 32, 533 (1976)
- /2/ R.O. Macfarlane und Wm.C. McHarris in J. Cerny
Nuclear spectroscopy and reactions, Part A, S. 249,
Academic Press, New York (1974)
- /3/ N. Trautmann, N. Kaffrell, H.W. Behlich, H. Folger, G. Herrmann, D. Hübscher und H. Ahrens
Radiochimica Acta 18, 86 (1972)
- /4/ R. Klapisch
Ann. Rev. Nucl. Sci. 19, 33 (1969)
- /5/ J. Bonn, W. Klempt, R. Neugart, E.W. Otten und B. Schinzler
Z. Phys. A 289, 227 (1979)
- /6/ J.P. Unik, J.E. Gindler, L.E. Glendenin, K.F. Flynn, A. Gorski und R.K. Sjoblom
in Physics and Chemistry of Fission (Proc. Symposium Rochester, 1973), Vol. 2, S. 19, IAEA Wien (1974)
- /7/ H.W. Schmitt, J.H. Heiler und F.J. Walter
Phys. Rev. 141, 1146 (1966)
- /8/ L.C. Northcliffe und R.F. Schilling
Nuclear Data Tables A 7, 233 (1970)
- /9/ Lexikon der Physik, 3. Auflage, Stuttgart 1969
a) S.1439 b) S. 34
- /10/ R.C. Weast und M.J. Astle
CRC Handbook of Chemistry and Physics, 59th ed. (1978)
- /11/ M. Weber, N. Trautmann und H. Menke
Jahresbericht 1974, Institut für Kernchemie der Universität Mainz
S. 118
- /12/ a) H.A. Cataldi und H.G. Drickamer
J. Chem. Phys. 18, 650 (1950)
b) A.L. Babb und H.G. Drickamer
J. Chem. Phys. 18, 655 (1950)
- /13/ W.J. Wieseahn, J.M. D'Auria und J.C. Irwin
Nucl. Instr. Meth, 114, 401 (1974)
- /14/ G.G. Grau in Landolt-Börnstein
6. Aufl., Bd. II/2a, S. 41 und 54, Berlin 1960

- /15/ F. Baumgärtner
Tabellen zur Neutronenaktivierung, Stuttgart 1967
- /16/ Selecta, Firmenveröffentlichung der Schleicher & Schüll GmbH,
Fi-S/D/1/1172
- /17/ R.J. Silva, N. Trautmann, M. Zendel, P.F. Dittner, E. Stender
und H. Ahrens
Nucl. Instr. Meth. 147, 371 (1977)
- /18/ W.J. Wieseahn, J.M. D'Auria, H. Dautet und B.D. Pate
Can. J. Phys. 51, 2347 (1973)
- /19/ M. Zendel, E. Stender, N. Trautmann und G. Herrmann
Nucl. Instr. Meth. 153, 149 (1978)
- /20/ M. Menke, N. Trautmann und W.-J. Krebs
Kerntechnik 17, 281 (1975)
- /21/ H. Jungclas, R.D. Macfarlane und Y. Fares
Phys. Rev. Lett. 27, 556 (1971)
- /22/ M.C. Hamming und N.G. Foster
Interpretation of Mass Spectra of Organic Compounds, Academic
Press, New York 1972
- /23/ J.H. Beynon
Mass Spectrometry and his Applications to Organic Chemistry
Elsevier Publ., Amsterdam 1960
- /24/ P.O. Aronsson, B.E. Johansson, J. Rydberg, G. Skarnemark,
J. Alstad, B. Bergersen, E. Kvale, M. Skarestad, G. Skarnemark
J. Inorg. nucl. Chem. 36, 2397 (1974)
- /25/ N. Trautmann, P.O. Aronsson, T. Björnstad, N. Kaffrell,
E. Kvale, M. Skarestad, G. Skarnemark und E. Stender
Inorg. nucl. chem. lett. 11, 729 (1975)
- /26/ J. Rydberg
Acta chem. Scand. 23, 647 (1969)
- /27/ H. Reinhardt und J. Rydberg
Acta chem. Scand. 23, 2773 (1969)
- /28/ G. Skarnemark
Dissertation 1977, Department of Nuclear Chemistry, Chalmers
University of Technology, Göteborg
- /29/ P.O. Aronsson, G. Skarnemark und M. Skarestad
J. inorg. nucl. Chem. 36, 1689 (1974)

- /30/ a) T. Björnstad, E. Kvale, G. Skarnemark, P.O. Aronsson,
N. Kaffrell, N. Trautmann und E. Stender
J. inorg. nucl. Chem. 39, 1107 (1977)
- b) G. Skarnemark, P.O. Aronsson, T. Björnstad, E. Kvale,
N. Kaffrell, E. Stender und N. Trautmann
J. inorg. nucl. Chem. 39, 1487 (1977)
- /31/ G. Skarnemark, E. Stender, N. Trautmann, P.O. Aronsson,
T. Björnstad, E. Kvale und M. Skarestad
Radiochimica Acta 23, 98 (1976)
- /32/ N. Trautmann, E. Stender, N. Kaffrell, K. Brodén, G. Skarne-
mark, T. Björnstad und I. Haldorsen
Jahresbericht 1977, Institut für Kernchemie der Universität Mainz
S. 6
- /33/ D.A. Arseniev, A. Sobiczewski, V.G. Solokiev
Nucl. Phys. A 139, 269 (1969)
- /34/ E. Cheifetz, R.C. Jared, S.G. Thompson und J.B. Wilhelmy
Phys. Rev. Lett. 25, 38 (1970)
- /35/ N. Kaffrell, N. Trautmann, G. Herrmann und H. Ahrens
Phys. Rev. C 8, 320 (1970)
- /36/ N. Trautmann, N. Kaffrell, H.W. Behlich, H. Folger, G. Herr-
mann, D. Hübscher und H. Ahrens
Radiochimica Acta 18, 86 (1972)
- /37/ J. Stachel-Häussler
Diplom-Arbeit 1978, Universität Mainz
- /38/ K. Sümmerer
Dissertation 1978, Universität Mainz
- /39/ H.J. Keim, K. Sümmerer, U. Tharun und G. Wirth
Jahresbericht 1975, Institut für Kernchemie der Universität Mainz
S. 80
- /40/ K. Sümmerer, U. Tharun, und H.J. Keim
Jahresbericht 1976, Institut für Kernchemie der Universität Mainz
S. 70
- /41/ Lederer/Shirley
Table of Isotopes, 7th ed., Wiley & Sons, New York 1978
- /42/ G. Franz und G. Herrmann
Inorg. Nucl. Chem. Letters 11, 857 (1975)

- /43/ G. Tittel, N. Kaffrell, N. Trautmann und G. Herrmann
J. inorg. nucl. Chem. 39, 2115 (1977)
- /44/ S.O. Scriber und M.W. Johns
Nucl. Phys. A 96, 337 (1967)
- /45/ H.C. Griffin und W.R. Pierson
Phys. Rev. 183, 991 (1969)
- /46/ G. Krömer, T. Lund, A.K. Mazumdar, E. Stender, N. Trautmann, H. Wagner und W. Walcher
Jahresbericht 1977, Institut für Kernchemie der Universität Mainz
S. 24
- /47/ A.K. Mazumdar, H. Wagner, W. Walcher und T. Lund
Nucl. Instr. Meth. 139, 319 (1976)
- /48/ A.K. Mazumdar
private Mitteilung 1978
- /49/ W. Walcher
Angew. Chem. 62, 182 (1950)
- /50/ M. Brügger
Diplomarbeit 1979, Universität Mainz
- /51/ W. Ploch und W. Walcher
Z. Phys. 127, 275 (1950)
- /52/ M. Camac
Rev. Sci. Instr. 22, 197 (1951)
- /53/ W.G. Cross
Rev. Sci. Instr. 22, 717 (1951)
- /54/ I. Chavet und M. Bernas
Nucl. Instr. Meth. 47, 77 (1967)
- /55/ I. Chavet
Proceedings of the International Conference on electromagnetic
isotope separators and the techniques of their applications
(BMWB-FB K 70-28), S. 303
- /56/ F.K. Wöhn
Report "The Study of Nuclei far from Stability with Tristan II
at the High Flux Beam Reactor at Brookhaven", IS-4270 (1977)
- /57/ A. Ghiorso
private Mitteilung an N. Trautmann
- /58/ N. Kaffrell, G. Franz, G. Klein, K. Sümmerer, G. Tittel, und
G. Herrmann, Proceedings 3rd International Conference on Nuclei
far from Stability, Genf 1976, S. 483

Ich danke Herrn Prof. G. Herrmann, daß ich unter weitgehend selbständiger Arbeitseinteilung am Institut für Kernchemie in Mainz eine Methode für den schnellen, kontinuierlichen Transport von Spaltprodukten entwickeln konnte. Besonders befriedigend war die anschließende Anwendung der Methode zur on-line Trennung kurzlebiger Spaltprodukte in zwei ganz unterschiedlichen Arbeitsgruppen. Herr Dr. N. Trautmann stand immer mit gleichbleibender Freundlichkeit oft weit über das zu erwartende Maß hinaus als Diskussionspartner bereit.

Die Bearbeitung der zahlreichen kernspektroskopischen Daten der Technetiumfraktionen hätten ohne die begleitenden Auswertungen von Herrn Dr. K. Sümmerer und Frau J. Stachel-Häussler nicht so umfassend stattfinden können. Ohne die bereitwillige und oft engagierte Mitarbeit von Frau D. Gembalies, Herrn H. Heimann und Frau U. Knitz wäre manches Experiment viel zeitraubender und von mehr Mißerfolgen begleitet gewesen; die Mannschaft der Reaktoroperateure ermöglichte die zahlreichen Bestrahlungen. Ich danke auch den Mitarbeitern der mechanischen Werkstatt, den Herren H. Haber, G. Lehr und L. Noll, die manchen ausgefallenen konstruktiven Wunsch erfüllt haben und von denen ich viele Kniffe lernen konnte. Frau E. Wüstner führte mit großer Sorgfalt die photographischen Arbeiten aus. Schließlich danke ich den Mitgliedern der skandinavischen SISAK-Kooperation aus Göteborg und Oslo, den Herren Dr. P. O. Aronsson, Dr. T. Björnstad, Frau K. Brodén, Frau Dr. I. Haldorsen, den Herren Dr. E. Kvale, Dr. M. Skarestad und Dr. G. Skarnemark sowie den Mitgliedern des Physikalischen Instituts der Universität Marburg, den Herren H. Fleischer, G. Krömer, Dr. A. K. Mazumdar und Dr. H. Wagner.

Lebenslauf

Name	Elmar Stender geb. am 17.12.1946 in Mainz
Eltern	Edeltrude Stender geb. Schwalbach, Hausfrau Herbert Stender, Ing. grad.
April 1953-April 1957	Volksschule Mainz-Gonsenheim
April 1957-März 1966	Rabanus Maurus Gymnasium Mainz Staatliches Altsprachliches Gymnasium
April 1966-November 1966	Wehrdienst
Wintersemester 1966/67	Aufnahme des Studiums der Chemie an der Johannes Gutenberg Universität Mainz
Mai 1974	Abschluß des Studiums mit dem Diplom- Chemiker-Hauptexamen
Mai 1974-Juli 1978	Dissertationsarbeit am Institut für Kern- chemie der Universität Mainz
August 1978	wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für zahnärztliche Werkstoffkunde und Technologie der Klinik für Zahn-, Mund- und Kieferkrankheiten der Universität Mainz

Druck: Reinartz

Copier- und Offset-Center

Gaustraße 16, Telefon 061 31/93870 + Kirschgarten 3, Telefon 061 31/96202
6500 Mainz

